

**UNIVERSITE DU QUEBEC**

**MEMOIRE PRESENTE A  
UNIVERSITE DU QUEBEC A TROIS-RIVIERES**

**COMME EXIGENCE PARTIELLE  
DE LA MAITRISE EN SCIENCES DES PATES ET PAPIERS**

**PAR  
ALAIN DUBOIS**

**MISE EN PATES DE MELEZE  
PAR LE PROCEDE AU SULFITE ALCALIN**

**JUIN 1989**

Université du Québec à Trois-Rivières

Service de la bibliothèque

Avertissement

L'auteur de ce mémoire ou de cette thèse a autorisé l'Université du Québec à Trois-Rivières à diffuser, à des fins non lucratives, une copie de son mémoire ou de sa thèse.

Cette diffusion n'entraîne pas une renonciation de la part de l'auteur à ses droits de propriété intellectuelle, incluant le droit d'auteur, sur ce mémoire ou cette thèse. Notamment, la reproduction ou la publication de la totalité ou d'une partie importante de ce mémoire ou de cette thèse requiert son autorisation.

## REMERCIEMENTS

Je voudrais d'abord exprimer mes sincères remerciements à mon directeur Dr. Jacques L. Valade et mon co-directeur Dr. Kwei N. Law pour leur précieuse collaboration et leur soutien.

Mes remerciements s'adressent aussi à M. Robert Lanouette, technicien au Centre de Recherche en pâtes et papiers de l'Université du Québec à Trois-Rivières, pour toute l'aide apportée et ses nombreux conseils.

Je désire également remercier mon épouse Lucie Giguère pour le support et l'encouragement qu'elle a su me donner de même que les organismes suivants qui m'ont permis de mener mon projet à bon terme;

- Personnel du Centre de Recherche en pâtes et papiers de l'Université du Québec à Trois-Rivières
- Personnel du Pavillon de la Papeterie du Cégep de Trois-Rivières
- Ministère de l'Energie et des Ressources du Québec
- Les Fonds pour la Formation des Chercheurs et l'Aide à la Recherche (Fonds F.C.A.R.) du Québec
- Le programme de bourse d'Intervention spéciale de l'Université du Québec à Trois-Rivières
- Le Conseil de Recherche en Sciences Naturelles et en Génie (C.R.S.N.G.) du Canada

D'autre part, je tiens à souligner que les résultats obtenus et décrits dans ce mémoire ont fait l'objet d'une présentation à la Conférence TAPPI PULPING qui s'est déroulée du 30 octobre au 3 novembre 1988 en Nouvelle-Orléans aux Etats-Unis. Le pré-tiré de cette présentation se retrouve en annexe A.

## TABLE DES MATIERES

	<u>Page</u>
REMERCIEMENTS	i
TABLE DES MATIERES	iii
LISTE DES TABLEAUX ET FIGURES	vi
NOMENCLATURE DES SIGLES ET ABREVIATIONS	viii
SOMMAIRE	x
 CHAPITRE 1 : INTRODUCTION	 1
 CHAPITRE 2 : ENCADREMENT DU PROJET SUR LES MELEZES EXOTIQUES	 3
 CHAPITRE 3 : RECHERCHE BIBLIOGRAPHIQUE	 5
3.1 Appréciation des essences forestières	5
3.1.1 Considérations sylvicoles des mélèzes japonais et européen	6
3.1.2 Les plantations de mélèzes exotiques et leur rendement	7
3.1.3 Problématique de la protection des mélèzes	8
3.1.4 Amélioration génétique et autres provenances	10
3.2 Anatomie et caractéristiques physiques des bois	11
3.2.1 Densité du bois	11
3.2.2 Longueur, diamètre et parois des fibres	12
3.2.3 Distribution des canaux résinifères	15

3.2.4 Epaisseur de l'écorce	15
3.3 Composition et propriétés chimiques	17
3.4 Mise en pâte des mélèzes	20
3.4.1 Procédé de mise en pâte chimicomécanique	22
3.4.1.1 La sulfonation et ses effets	23
3.4.1.2 Le raffinage et ses effets	25
CHAPITRE 4 : TECHNIQUES EXPERIMENTALES	28
4.1 Spécifications et provenances des arbres	28
4.2 Mise en copeaux et classification	28
4.3 Fabrication des pâtes chimicomécaniques	29
4.3.1 La cuisson des copeaux	29
4.3.2 Le raffinage des copeaux	30
4.4 Elaboration du plan expérimental pour la PCM	35
4.5 Utilisation des méthodes et essais standardisés selon TAPPI et ACPPP	39
CHAPITRE 5 : RESULTATS ET DISCUSSIONS	41
5.1 Rendements des PCMR	41
5.2 Conditions de raffinage	46
5.3 Tendances générales des propriétés	49
5.4 Classification des fibres	51
5.4.1 Classification selon le rendement	52
5.4.2 Classification selon l'énergie spécifique	57
5.5 Relations et analyses des diverses propriétés physiques	60
5.5.1 La densité du papier	60

5.5.2 Résistances physiques en fonction du rendement	65
5.5.3 Résistances physiques en fonction de l'énergie spécifique	73
5.5.3.1 Consommation d'énergie	73
5.5.3.2 Résistance à la rupture	76
5.5.3.3 Résistance à l'éclatement	81
5.5.3.4 Résistance à la déchirure	83
5.6 Relations et analyses des propriétés optiques	88
5.6.1 La blancheur du papier	88
5.6.2 Le coefficient de diffusion de la lumière	95
5.7 Effet du temps de cuisson sur les propriétés	100
5.8 Blanchiment des pâtes	107
 CHAPITRE 6 : BREVE ANALYSE ECONOMIQUE	 112
6.1 Coût de la matière fibreuse	113
6.2 Coûts énergétiques	115
6.3 Coûts des agents chimiques	118
6.4 Coûts totaux de production	120
 CHAPITRE 7 : CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS	 123
CHAPITRE 8 : BIBLIOGRAPHIE	126
Annexe A : Photocopie du présumé ALKALINE SULFITE HIGH YIELD PULPING OF EUROPEAN AND JAPANESE LARCHES; COMPARISON WITH BLACK SPRUCE. Présentation à la conférence TAPPI PULPING, Nouvelle-Orléans, USA, 1988.	135

## LISTE DES TABLEAUX ET FIGURES

	Page
TABLEAUX :	
1 - Méthodes normalisées selon ACPPP et TAPPI	40
2 - Conditions de raffinage des PCM	48
3 - Caractéristiques papetières des PCM	50
4 - Distribution des fractions de fibres	56
5 - Niveau de blancheur des PCM	90
6 - Effet de la charge de peroxyde et de la charge d'hydroxyde de sodium sur le blanchiment des pâtes	108
7 - Effet d'un deuxième stage à l'hydrosulfite de sodium sur une pâte chimicomécanique de raffineur	109
8 - Brève analyse économique	122
<hr/>	
FIGURES :	
1 - Lessiveur de 32 litres du Cégep de Trois-Rivières	31
2 - Unité pilote de raffinage SUNDS CD-300	33
3A - Etapes expérimentales des PCMR	37
3B - Etallonnage de la courbe du carbone total	38
4 - Rendement en fonction du temps de cuisson	44
5 - Rendement en fonction du taux total de carbone	45
6 - Distribution des fractions de fibres en fonction du rendement	53
7 - Distribution des fractions de fibres en fonction de l'énergie spécifique	58



8 - Densité du papier en fonction du rendement	61
9 - Densité du papier en fonction de l'énergie spécifique	63
10 - Longueur de rupture en fonction du rendement	66
11 - Indice d'éclatement en fonction du rendement	68
12 - Indice de déchirure en fonction du rendement	70
13 - Indice de déchirure en fonction du % de fibres longues	71
14 - Indice d'égouttage en fonction de l'énergie spécifique	74
15 - Longueur de rupture en fonction de l'énergie spécifique	77
16 - Longueur de rupture en fonction de la densité	79
17 - Indice d'éclatement en fonction de l'énergie spécifique	82
18 - Indice de déchirure en fonction de l'énergie spécifique	84
19 - Indice de déchirure en fonction de l'indice de rupture	86
20 - Blancheur en fonction de l'indice d'égouttage	91
21 - Influence du temps de cuisson sur la blancheur	93
22 - Coefficient de diffusion de la lumière en fonction du rendement	96
23 - Coefficient de diffusion de la lumière en fonction de l'énergie	98
24 - Influence du temps de cuisson sur l'énergie spécifique	102
25 - Influence du temps de cuisson sur la longueur de rupture	104
26 - Influence du temps de cuisson sur la résistance à la déchirure	106

## NOMENCLATURE DES SIGLES ET ABREVIATIONS

PMR : Pâte mécanique de raffineur; le raffinage s'exécute sous pression atmosphérique et sans addition d'agent chimique.

PTM : Pâte thermomécanique; le raffinage s'exécute sous pression de vapeur et sans addition d'agent chimique.

PCM : Pâte chimicomécanique de raffineur; le raffinage s'exécute sous pression atmosphérique après un traitement chimique des copeaux.

PCTM : Pâte chimicothermomécanique; le raffinage s'exécute sous pression de vapeur après un traitement chimique des copeaux.

all. : Allongement dû à la traction (%).

Cdl : Coefficient de diffusion de la lumière ( $\text{cm}^2/\text{g}$ ).

CSF : Indice d'égouttage de la pâte (Can. Stand. Freeness)(ml).

EN : Epinette noire.

Id : Indice de déchirure ( $\text{mN}\cdot\text{m}^2/\text{g}$ ).

Ie : Indice d'éclatement ( $\text{KPa}\cdot\text{m}^2/\text{g}$ ).

Lr : Longueur de rupture (km).

MJ : Mélèze japonais.

ME : Mélèze européen.

R14 ou L14: Fraction de fibres retenue sur le tamis de 14 mailles au pouce selon la classification Bauer McNett.

R28 ou L28: Fraction de fibres passée à travers le tamis de 14 mailles au pouce mais retenue sur le tamis de 28 mailles au pouce.

R48 ou L48: Fraction de fibres passée à travers le tamis de 28 mailles au pouce mais retenue sur le tamis de 48 mailles au

pouce.

R100 ou L100: Fraction de fibres passée à travers le tamis de 48 mailles au pouce mais retenue sur le tamis de 100 mailles au pouce.

R200 ou L200: Fraction de fibres passée à travers le tamis de 100 mailles au pouce mais retenue sur le tamis de 200 mailles au pouce.

P200: Fraction de fibres qui passe à travers le tamis de 200 mailles au pouce, valeur déduite par différence.

## SOMMAIRE

Le projet que nous avons entrepris est une évaluation du comportement des pâtes chimicomécaniques de deux essences de mélèze cultivé en plantation, les mélèzes japonais et européen, lesquels dû à leur croissance rapide démontrent un grand potentiel pour l'industrie papetière comme matériel d'approvisionnement.

Un procédé au sulfite alcalin ( $\text{pH}=12$ ) fut utilisé pour évaluer l'effet des paramètres de cuisson sur ces mélèzes en comparaison avec l'épinette noire.

Le rendement en pâte variait de 78 à 90 % dépendamment du temps de cuisson qui variait de 20 à 80 minutes à une température constante de 170 °C. Chaque cuisson fut suivie d'un raffinage des copeaux sous pression atmosphérique. Les résultats obtenus montrent que l'épinette noire donne le rendement le plus élevé à un temps de cuisson donné, le mélèze japonais le plus faible et le mélèze européen donne un rendement intermédiaire.

Concernant l'énergie spécifique de raffinage, les deux mélèzes ont requis beaucoup plus d'énergie que l'épinette noire pour un indice d'égouttage donné. De plus, les deux mélèzes ont donné des mesures particulièrement faibles au niveau de la longueur de rupture (4,5 - 6,5 km) en comparaison avec l'épinette noire (6,5 - 9,0 km). Par contre, ils ont produit des pâtes ayant de bonnes résistances à la déchirure (8 - 10 contre 6,5 - 7,5  $\text{mN}\cdot\text{m}^2/\text{g}$ ). Pour ce qui est de la blancheur, lorsqu'on compare les

échantillons réalisés sous les mêmes conditions de cuisson, les mélèzes sont nettement désavantagés, soit près de 15 points en moins (25 - 30 % contre 40 - 45 %).

Avec des pâtes fabriquées à partir de mélèze, on constate donc que les niveaux de blancheur sont relativement faibles et que ces pâtes sont difficiles à blanchir, mais elles démontrent tout de même de bonnes propriétés mécaniques. Ces pâtes devraient donc trouver une utilisation dans les papiers d'emballage particulièrement lorsqu'elles sont employées et mélangées avec l'épinette noire ou d'autres essences dites commerciales.

## CHAPITRE 1

### INTRODUCTION

L'industrie des pâtes et papiers se voyant confrontée à un manque de matière première à partir d'essences comme l'épinette noire, le pin gris et le sapin baumier, devra remédier à cette situation. A cause de la qualité de leurs fibres, les dites essences ont fait l'objet d'une exploitation excessive à proximité des moulins et les gestionnaires sont maintenant aux prises avec un approvisionnement de plus en plus coûteux car les distances à parcourir pour obtenir des fibres de qualité augmentent sans cesse.

Par conséquent les mélèzes japonais et européen, caractérisés par une croissance rapide, donc une courte révolution, et une densité ligneuse encore plus élevée que les essences déjà employées, représentent une option de premier choix pour la récolte de bois à pâte. L'une des solutions à moyen terme est d'instaurer de nouvelles plantations ou de reboiser les parterres de coupe afin de tirer un meilleur parti du potentiel de production d'un site en matière ligneuse, c'est-à-dire implanter ces deux espèces de mélèze dans un contexte profitable. Cette politique de décision se veut être réaliste. Du fait que l'ensemble des espèces appartenant au genre mélèze possèdent de fortes capacités d'adaptation face à nos conditions pédologiques et climatiques, donc d'offrir de bons rendements

ligneux en de courts laps de temps, alors les attentes et objectifs des gestionnaires seront plus facilement concrétisables et percevables.

Ainsi l'utilisation d'essences à croissance rapide, comme les mélèzes japonais et européen, facilitera le maintien d'une position beaucoup plus concurrentielle pour l'industrie québécoise des pâtes et papiers vis-à-vis la concurrence étrangère. Par contre les règles de la concurrence exigent également une qualité respectable des produits papetiers fabriqués à partir de mélèze si l'on désire accroître sa substitution partielle ou totale aux espèces traditionnelles.

C'est pourquoi ce mémoire a pour objectif d'évaluer l'aptitude des mélèzes japonais et européen à la mise en pâte à très haut rendement par le procédé chimicomécanique au sulfite alcalin. Les résultats obtenus tenteront de sensibiliser l'industrie papetière à ces deux essences de plantation pour éventuellement équilibrer leurs sources d'approvisionnement.

## CHAPITRE 2

### ENCADREMENT DU PROJET SUR LES MELEZES EXOTIQUES

Le Centre de Recherche en Pâtes et Papiers de l'Université du Québec à Trois-Rivières ayant acquis depuis le début des années '80 une vaste expérience sur la mise en pâte à haut rendement d'essences feuillues, principalement le bouleau et le tremble, désirait poursuivre ses travaux avec les essences à croissance rapide mais de nature résineuse, et ce pour palier au manque futur de matière première dans la fabrication du papier journal.

Le choix s'est alors arrêté sur le mélèze. Cette essence résineuse comporte diverses espèces, les mélèzes laricins, japonais et européens qui sont les plus connus au Québec, les deux dernières étant exotiques. Certains chercheurs du Centre débutèrent et axèrent leurs recherches sur ces essences dites non-commerciales afin de mieux les valoriser.

Les études et les travaux ont d'abord porté sur les difficultés et les avantages de la mise en pâte de même que sur les propriétés papetières du mélèze laricin. Avec cette espèce, les procédés de mise en pâte à haut rendement analysés à ce jour incluent les pâtes mécaniques de raffineur, les pâtes thermomécaniques, les pâtes chimicomécaniques et les pâtes chimicothermomécaniques. A la suite des résultats, le projet



devait se poursuivre avec les mélèzes exotiques déjà cités. Les arbres de ces deux essences résineuses sont le résultat de certaines plantations appartenant au Ministère de l'Energie et des Ressources du Québec (MER) et cet organisme désire connaître la valeur papetière de ces espèces à croissance rapide. Des pâtes mécaniques de raffineur, thermomécaniques et chimicothermomécaniques ont été produites.

Le présent projet constitue ainsi une partie des efforts de recherche continue pour valoriser ces essences à croissance rapide. Nous avons employé une pâte de mélèze chimicomécanique de raffineur, avec un prétraitement au sulfite alcalin, dont les caractéristiques ont été comparées à une même pâte d'épinette noire; essence privilégiée.

## CHAPITRE 3

### RECHERCHE BIBLIOGRAPHIQUE

#### 3.1 Appréciation des essences forestières

La forêt canadienne se compose principalement d'arbres résineux, et parmi ceux-ci se retrouve le groupe des mélèzes qui, soit disant, est le plus productif de l'est du Canada pour des rotations de moins de 30 ans [1,7].

A l'intérieur de ce groupe, outre l'espèce indigène la plus répandue; le mélèze laricin (Larix laricina (Du Roi) K. Koch); on rencontre également quelques essences introduites comme le mélèze européen (Larix decidua Mill.) et le mélèze japonais (Larix leptolepis Gord.). Ces deux dernières sont utilisées dans ce mémoire. La pertinence de ces deux mélèzes exotiques comme choix d'étude repose sur leur impressionnante croissance de même qu'une qualité fort acceptable au niveau de la fibre. Il est à souligner que l'épinette noire, dont la description n'est plus à faire, servira d'essence de comparaison dans cette étude.

Du fait qu'ils sont exotiques, les mélèzes japonais et européen ne se rencontrent qu'en site de plantation. Sur les terrains à reboiser, ils préféreront des sites élevés, bien égouttés, et bien éclairés car ils ne peuvent supporter l'ombre créée par un couvert végétal trop dense [7].

Le port de ces arbres est droit. Une cime courte, claire et

étroite, de forme conique, les caractérise. La tombée de leurs aiguilles à l'automne demeure leur plus grande distinction vis-à-vis les autres conifères. Leur système racinaire, peu profond, 0,5 mètre, mais très bien étalé peut résister à des forces latérales assez violentes, le vent par exemple [7,8,15].

Cette brève description complète ainsi l'identification du mélèze japonais et du mélèze européen; essences exotiques du genre Larix.

### 3.1.1 Considérations sylvicoles des mélèzes japonais et européen

Pour mieux subvenir, dans un proche avenir, aux besoins de l'industrie papetière en matière de ressource première, il est donc primordial qu'un suivi sylvicole soit affecté régulièrement sur les plants mis en terre. De tous les mélèzes, les deux essences exotiques à l'étude semblent plus faciles à produire en culture [2,16].

En pépinière, suite à une bonne germination lorsque le plant est bien vigoureux, il s'avère important que le délai entre l'arrachage des semis et la transplantation sur les sites à reboiser soit réduit au minimum car les plants de mélèze débourrés sont très fragiles; conséquence de leur croissance rapide. Une culture de plants en godet diminue énormément ce problème. La hauteur des plants doit aussi être respectable avant la transplantation si l'on désire obtenir des résultats satisfaisants car la végétation concurrente, comme le framboisier

qui s'installe dans les bûches après la coupe, demeure un obstacle majeur pour une essence de lumière comme le mélèze, cependant sa forte croissance juvénile peut en restreindre les risques [2].

Après cinq ans, le site reboisé sera dégagé mécaniquement étant donné que le mélèze est très sensible aux herbicides. Par la suite, une ou deux opérations de dégagement ou d'éclaircie viendront améliorer la qualité des sujets pour l'obtention d'un volume ligneux supérieur à l'âge d'exploitabilité. Les maladies, insectes et autres dangers devront être détectés pour assurer un bon développement des arbres [15].

### 3.1.2 Les plantations de mélèzes exotiques et leur rendement

Bien que le mélèze demeure encore une essence très peu populaire pour les travaux de reboisement, il n'en reste pas moins qu'il démontre une croissance exceptionnelle dans la plupart des plantations là où l'on a tenté l'expérience. Cet arbre offre donc la possibilité de renouveler la forêt rapidement. En 20 ans, où il peut être récolté comme bois à pâte, il se compare à un sapin âgé de 60 ans [8]. C'est donc dire que le mélèze de plantation peut donner jusqu'à trois récoltes contre une seule pour le sapin ou l'épinette. De plus, le mélèze, avec sa forte densité, peut produire pour un même volume près de 25 % plus de pâte que le sapin [8].

Des mesures prises dans une plantation de mélèzes européens âgés de 28 ans, aux environs de Drummondville, indiquaient un

volume total de 12,4 m<sup>3</sup>/ha/an contrairement à 4,1 m<sup>3</sup>/ha/an pour le pin gris et à 6,6 m<sup>3</sup>/ha/an pour une plantation voisine d'épinettes blanches [8].

Aussi étonnant que ça puisse l'être, le mélèze japonais peut atteindre les dimensions de ces mêmes épinettes quatre fois plus rapidement tout en produisant deux fois plus de bois annuellement à l'hectare [4,8]. Comparées au mélèze laricin, certaines provenances de mélèzes européens et particulièrement japonais croissent plus rapidement et semblent capables de fournir 1,5 à 2 fois plus de bois pour les opérations de mise en pâte [1].

Ces quelques données démontrent grandement que les mélèzes doivent faire partie des espèces qui devront répondre aux besoins futurs de matière ligneuse.

### 3.1.3 Problématique de la protection des mélèzes

La croissance du jeune mélèze sera souvent retardée par divers agents pathogènes, mais ces derniers ne semblent pas créer d'ennuis physiologiques et économiques telles que la culture du mélèze japonais ou européen soit plus compromise que celle d'une autre essence.

Sur le tronc du mélèze européen, on pourra occasionnellement retrouver le chancre du mélèze; Dasyscypha willkommii; mais il semblerait que son développement soit ralenti par le climat existant [3]. Plus haut dans la cime, les aiguilles pourront

subir une défoliation causée par des rouilles, mais toujours sans trop de dommages. Dans le sol, la présence d'Armillaria mellea, s'attaquant aux racines, pourra être fréquente. Cependant, comme dans le cas des rouilles, l'arbre n'en ressentira aucune conséquence trop désastreuse.

Au niveau des insectes, il est primordial de bien surveiller les arbres contre l'attaque de la tenthrède du mélèze, communément appelée mouche-à-scie du mélèze, qui est considérée à juste titre comme étant le pire fléau du genre Larix [3,23]. Les dégâts résultent de l'alimentation des aiguilles par les larves pouvant causer le dépérissement puis la mort de l'arbre. L'arrosage à l'aide d'un insecticide tel le Carbaryl (Sévin) est souhaitable si l'infestation s'étend considérablement à l'intérieur du peuplement forestier [15]. La tordeuse des bourgeons d'épinette est également néfaste au mélèze. Par contre, il faut noter que le mélèze résiste beaucoup mieux à des défoliations répétées que les autres conifères qui eux ne refont pas totalement leurs aiguilles au printemps [15,23]. De grandes monocultures sont à déconseiller, il est préférable de mélanger les essences par îlot à l'intérieur d'une plantation plutôt que de vouer l'aménagement intensif à un échec certain.

D'autre part, les mélèzes japonais et européen sont souvent exposés aux blessures causées par certains animaux. Le porc-épic par exemple se nourrit fréquemment de l'écorce. D'autres mammifères: lièvre, orignal et chevreuil; peuvent aussi ronger l'écorce et l'extrémité des jeunes pousses provoquant de graves blessures et des incisions favorables à l'implantation de

maladies. Il en résulte une diminution de la croissance et du volume récolté [3].

#### 3.1.4 Amélioration génétique et autres provenances

Plusieurs tests d'amélioration ont déjà été effectués pour intensifier l'utilisation des espèces et des hybrides du genre Larix lors de travaux de reboisement.

Le mélèze d'Europe, provenance d'Italie, démontre une résistance accrue au froid, les gelées d'automne n'influençant guère ses fonctions physiologiques. Une autre provenance d'Allemagne enregistre une hauteur maximale de 58 cm après deux ans, de même que des branches étalées horizontalement; qualité très recherchée [3]. Chez le mélèze japonais, la plupart des provenances croissent fortement en hauteur à l'âge juvénile. Après deux ans, les plants mesuraient de 51 à 58 cm de haut. Par contre, on note une faible résistance aux gelées hâtives et tardives, ce qui provoque chez l'individu une forme arbustive. Ce résultat dévoile le caractère intéressant de cette essence à des fins de reboisement pour les zones tempérées seulement [3].

Par leur facilité de croisement, les différentes espèces de mélèze présentent plusieurs hybrides naturels et artificiels. D'ordre naturel, on a découvert Larix decidua x Larix leptolepis puis Larix laricina x Larix decidua. Artificiellement, on a obtenu Larix leptolepis x Larix laricina. Ces hybrides manifestent les qualités désirées de chacun des deux parents.

Selon Gilles Vallée [3], l'hybride formé par ( *L. laricina* x *L. leptolepis* ) x *L. decidua* serait un composé très favorable pour les années à venir en vue du reboisement d'essences résinifères au Québec.

### 3.2 Anatomie et caractéristiques physiques des bois

Les paramètres physiques du bois qui seront décrits aux pages suivantes sont variables selon les différentes espèces de mélèze. Leur influence au niveau d'un procédé de mise en pâte se révèle donc très significative.

#### 3.2.1 Densité du bois.

Cette propriété, étant un important indice de la qualité du bois, joue un rôle majeur sur le rendement en fibre et sur les propriétés du produit fini. Parmi l'ensemble des résineux de l'est canadien, le mélèze possède une densité, ou volume spécifique, relativement plus élevée le rendant inaccessible au transport par voie d'eau ne pouvant flotter sur de longues distances lorsque l'eau s'y imprègne; transport de plus en plus délaissé à cause de la pollution environnementale provoquée.

Par rapport aux autres essences commerciales, les mélèzes japonais et européen enregistrent des volumes spécifiques compris entre 0,48 et 0,55 g/cm<sup>3</sup> comparativement à 0,38 pour l'épinette, 0,40 pour le pin et 0,36 g/cm<sup>3</sup> pour le sapin, soit près de 35 %



de plus [5,11]. C'est cette remarquable démarcation qui permet de fournir 25 % plus de bois pour une même unité de volume [5,8,11]. A l'âge adulte, la densité moyenne du bois du mélèze japonais surpasse légèrement celle du mélèze européen. Cette différence peut être partiellement reliée aux dimensions de la fibre (voir section 3.2.2). Sur un même individu, la densité du bois en section transversale augmente sévèrement d'un cerne printanier vers un cerne d'été. Ce bois final, bois d'été, représente 25 à 30 % de l'arbre [4]. Elle augmente aussi légèrement de la cime à la souche [17], et de la moelle vers le cambium [22]. Donc elle augmente directement en fonction de l'âge. Malgré que le mélèze soit un arbre dont les branches sont bien étalées, la distribution des noeuds dans la tige peut causer certaines surestimations du volume spécifique. D'autres facteurs comme le taux de croissance, la génétique, le diamètre et l'épaisseur des parois de la fibre, sont en relation étroite avec cette propriété du bois.

D'ordinaire, les bois caractérisés par un volume spécifique élevé demandent beaucoup plus d'énergie lors de la mise en copeaux et lors du raffinage. Le papier qui en résulte possède une main importante au détriment des résistances mécaniques [14].

### 3.2.2 Longueur, diamètre et parois des fibres

Avec les résineux, le papetier emploie généralement le terme "fibre" pour désigner la trachéide du bois. La longueur maximale

de celle-ci détermine souvent le choix entre plusieurs essences forestières pour la fabrication du papier, contribuant largement à l'obtention de bonnes résistances mécaniques. Ceci est dû au fait que le nombre de liens inter-fibres sur une même trachéide s'accroît lorsque la surface spécifique augmente. Cette surface étant reliée directement à la longueur de la trachéide, le mélèze comme l'épinette en ressort grandement valorisé. Variant de 2,9 à 4,1 mm, la fibre atteint les mêmes valeurs que celles de l'épinette et surpasse celles du pin gris; 2,2 mm environ [5,14].

La fibre du mélèze japonais semble légèrement plus longue que celle du mélèze européen en moyenne. La longueur de la trachéide, chez un même individu, croît de la moelle au cambium à l'intérieur de la tige. Les valeurs seront aussi supérieures à la souche de l'arbre plutôt que dans les bois de cime [5]. Un mélèze plus âgé présente donc une longueur de fibre plus grande qu'un autre moins âgé; il procure ainsi un indice de déchirure amélioré.

Le diamètre des fibres, influençant la densité, varie exceptionnellement si l'on passe du bois initial au bois final, soit de 38-45 microns à 8-28 microns d'après la littérature, ce qui explique l'aspect marqué entre ces deux zones; le bois d'été étant beaucoup plus dense [5,13,14]. La fibre d'épinette possède un diamètre moyen d'environ 35 microns et celle du pin 42 microns [13]. Le mélèze japonais est caractérisé par une fibre de diamètre moindre, ce qui témoigne en partie la supériorité de son

volume spécifique par rapport au mélèze européen [5,22].

Pour la formation du papier, l'épaisseur de la paroi cellulaire des fibres est un autre paramètre important. Lorsque cette dimension est très faible, la fibre est flexible, souple et accorde de meilleures possibilités d'enchevêtrement formant des liaisons fibre-à-fibre plus solides et un papier plus résistant. Ceci étant, la paroi de la trachéide de printemps du mélèze, 1,8 micron en moyenne, surpasse celle de l'épinette avec 1,5 micron [13,22]. Par contre cette différence s'élève si l'on considère une fibre provenant d'une zone de croissance estivale. De 1,8 micron d'épais, elle passe à 4,9 microns, voilà la compréhension théorique de la forte densité rattachée au mélèze [22]. Ce qui affectera, comme il l'a déjà été mentionné, le taux d'énergie appliquée lors du raffinage. De plus, désavantageant le mélèze, cette paroi très épaisse rend la fibre relativement moins flexible affectant ainsi le réseau de liaisons avec les autres fibres. Les résistances mécaniques du papier en accusent un effet négatif, sauf l'indice de déchirure qui lui peut en tirer profit.

Le mélèze européen a une épaisseur de paroi cellulaire, pour sa fibre d'été, de près de 0,5 micron de plus vis-à-vis l'essence japonaise [5]. Cette constatation a pour effet de diminuer l'importance du diamètre inférieur de la fibre du mélèze japonais, laissant ainsi une faible variation entre les volumes spécifiques de ces deux essences étudiées.

### 3.2.3 Distribution des canaux résinifères

Les canaux résinifères ne sont normalement présents que chez les pins, les épinettes et les mélèzes [25]. Ils sont absents chez le sapin, la pruche, le cèdre et le cyprès, sauf en cas de blessure [25]. Chez le mélèze et l'épinette, ils sont petits et peu nombreux. Un canal résinifère chez l'épinette noire par exemple s'apparente plutôt à un canal traumatique, tandis que chez le mélèze, la fonction première du canal est bien d'emmagasinier des résines et des gommes néfastes pour les pâtes. Pour les mélèzes, la fréquence et la distribution de ces canaux varient considérablement. Ils se retrouvent en plus grande quantité sur des coupes transversales de mélèze japonais [5,22]. Ils se présentent, au nombre de 2 à 14, en bandes tangentielles dans les zones de bois de printemps, et irrégulièrement dispersés dans les zones de bois d'été [5,22]. Chez le mélèze européen, ces canaux sont solitaires ou étalés par groupe de 2 à 6, puis répartis variablement dans la zone dense du bois d'été et dans la zone de transition formée par le bois d'été et de printemps [5, 22]. Les résines ne causent pas d'odeur particulière mais projettent sur le bois un aspect huileux [4], il est préférable de les extraire entièrement pour éviter les problèmes de poix sur les toiles de la machine à papier.

### 3.2.4 Epaisseur de l'écorce

Des méthodes d'exploitation récentes mettant l'emphasis sur

l'utilisation de l'arbre entier soulèvent l'intérêt de bien connaître les caractéristiques de l'écorce.

Sur un mélèze, le pourcentage d'écorce peut varier de 12 à 22 % sur le pourtour de l'arbre (poids sec) [17]. Ce taux est relativement plus élevé que celui de l'épinette ou du pin où l'on observe 9 à 17 % et 6 à 15 % d'écorce respectivement [17]. Le taux augmente de la base de l'arbre à la cime dû à un diamètre moindre de la tige en hauteur. L'épaisseur de l'écorce est d'environ 0,75 cm à la souche et varie jusqu'à 0,10 cm à l'autre extrémité [18]. La croissance et la maturité des arbres occasionnent normalement une baisse du pourcentage d'écorce car le volume de bois ligneux augmente et des pertes d'écorce surviennent; phénomène de desquamation.

A l'âge de dix ans, le mélèze japonais semble revêtu d'une écorce plus épaisse que le mélèze européen. A long terme, soit à l'âge adulte, l'inverse est spécifié par la littérature [22].

Si les arbres sont écorcés sur les chantiers d'abattage, les écorces peuvent être répandues sur le sol afin d'améliorer la fertilité de ce dernier en y retournant à la fois des éléments minéraux et de la matière organique rapidement assimilables. Cet épandage favorise un maintien de la fertilité du sol et accentue la croissance juvénile des arbres qui y seront ultérieurement plantés [26].

### 3.3 Composition et propriétés chimiques

La répartition des constituants chimiques du bois présents chez le mélèze rejoint partiellement celle de l'épinette. La différence se retrouve au niveau des taux, soit 44 % environ de cellulose pour le mélèze comparativement à 54 % pour l'épinette et 48 % pour le pin gris [5,9]. La lignine représente près de 27 % de l'ensemble d'une tige de bois [5]. Puis, environ 18 % d'hémicellulose et des extractibles complètent la structure [9,31].

La quantité de produits extractibles que comporte le bois de mélèze le distingue également parmi les autres conifères, ces composés chimiques retiennent donc davantage notre attention.

Le bois de coeur, ou duramen, constitue la zone foncée et centrale de la tige qui ne contient plus de cellules vivantes et dans laquelle les matières de réserve ont disparu ou ont été transformées en substances de bois parfait. Contrairement à l'aubier, dont les parenchymes sont vivants, les ponctuations des fibres du bois de coeur sont partiellement ou totalement bouchées, ce qui rend difficile l'infiltration des agents chimiques lors d'une imprégnation. Dans une bille de mélèze, le bois de coeur représente 45 à 60 % de matière fibreuse, 30 % pour le pin gris et moins de 20 % pour l'épinette [5]. Ce taux décroît avec la hauteur sur la tige et tend à croître avec l'âge. C'est effectivement ce bois parfait qui renferme la plupart des matières extractibles et particulièrement chez le mélèze.

Les produits extractibles à l'eau d'importance majeure sont les flavones et l'arabinogalactose. Ce dernier qui est un sucre réducteur peut se retrouver à des concentrations de 5 à 25 % dépendamment de la position dans l'arbre [10,19,31]. Les flavones, de nature phénolique, sont responsables de la résistance du bois à l'action des produits chimiques lors de cuissons au sulfite acide, en plus de rendre la pâte très foncée. L'arabinogalactose est un polysaccharide hautement ramifié par des groupements arabinose et galactose (rapport 1:6) puis par des acides glucuroniques [31]. Ce composé chimique, propre au mélèze, se situe dans le lumen des trachéïdes du bois de coeur et de l'aubier. De plus, sa haute ramification le contraint à une faible viscosité. Ces deux critères facilitent son extraction à l'eau, ce qui en fait un composé soluble [1,9,31].

Introduits dans divers solvants, les constituants du bois de mélèze démontrent une bonne solubilité. Dans l'alcool-benzène, on peut extraire jusqu'à 3,5 % de matières solubles [5,19], ce qui équivaut à l'épinette et au pin gris selon la littérature. Par contre, c'est dans l'eau chaude ou froide selon le cas, que l'on dénote une particularité. Ainsi le duramen peut perdre plus de 10 % de sa substance à l'eau chaude, de 6 à 8 % pour l'arbre entier, contre 4,3 % et 5,8 % pour l'épinette et le pin gris respectivement [5,22]. Le mélèze japonais contenant plus de canaux résinifères que la provenance d'Europe possède également un taux de produits extractibles supérieur (10,71 % vs 8,0 % à l'eau froide, 17,3 % vs 8,25 % dans 1 % NaOH) [22]. Une

extraction avec une solution de soude caustique agit plus fortement, donc si le pH d'une liqueur sulfiteuse est basique, alors les produits extractibles seront davantage dissouts dans la liqueur résiduelle et le rendement en sera d'autant plus diminué [19]. Par extraction à l'acétone, il est aussi possible d'éliminer les résines et d'autres phénols, ceux-ci étant responsables des réactions de condensation de la lignine lors d'une sulfonation [31]. La présence de tous ces extractibles affecte le rendement des procédés, accroît la demande des agents chimiques de réaction, abaisse la blancheur des pâtes, et devraient être récupérés, concentrés et brûlés afin de fournir l'énergie aux différents départements du moulin [20].

Cette grande proportion de matières solubles peut être utilisée à des fins de remplacement de colle synthétique dans la fabrication de panneaux-particules. Aux Etats-Unis, on produit le STRACTAN avec l'arabinogalactose, on s'en sert comme défloculant au niveau de l'industrie papetière. D'autres sous-produits sont commercialisés en pharmacie, dans le textile, ou dans l'alimentation car les arabinogalactoses procurent la gomme arabique; ingrédient alimentaire [1,4,11,31].

A tout cela, rappelons que l'écorce du mélèze est très riche en tannins [4].



### 3.4 Mise en pâte des mélèzes

Diverses expériences et travaux font rapport de l'utilisation potentielle du mélèze pour fabriquer de la pâte et du papier à partir de procédés chimiques à bas rendement. D'abord au niveau des pâtes Kraft, le mélèze fortement utilisé en Russie obtient des propriétés mécaniques semblables à celles des autres résineux mais à des rendements inférieurs, conséquence de son taux élevé de matières extractibles [21,23]. A de basses sulfonations, le mélèze se délignifie donc moins rapidement et une grande fraction de bûchettes en résulte. Avec des charges d'alcali actives importantes ou des temps de cuisson supérieurs, le taux de bûchettes diminue et les propriétés mécaniques s'approchent des propriétés obtenues par l'épinette pour des nombres Kappa identiques [1]. La couleur foncée de ces pâtes Kraft offre un désavantage marqué pour le mélèze mais il semble que ce procédé au sulfate soit celui qui convienne le mieux pour cette essence [24]. L'utilisation du mélèze dans le procédé au sulfite ou bisulfite acide se compare assez bien au procédé Kraft, on obtient cependant un rendement légèrement supérieur. Sauf pour la déchirure, les résistances du papier en sont aussi augmentées [1].

Grâce à la nouvelle technologie, il a maintenant été possible d'incorporer le mélèze dans des procédés modernes de défibrage mécanique, avec ou sans traitement chimique, les procédés conventionnels ne donnant pas une pâte de haute qualité [22,24]. Par contre il suffit de scruter l'ensemble de la

littérature scientifique déjà parue et qui traite de la mise en pâte du mélèze pour se rendre compte que l'étude de ces procédés à haut rendement ne remonte guère aussi loin que celle des procédés chimiques à faible rendement. Il m'apparaît donc difficile de bâtir une analyse complète du mélèze pour l'ensemble des procédés mécaniques. D'abord sans traitement chimique, les pâtes mécaniques de raffineur (PMR) sous pression atmosphérique fabriquées à partir de mélèze surpassent en qualité les pâtes mécaniques de meule fabriquées avec un bois d'épinette [11,14] (15 à 20% plus résistantes à la traction et 65% plus résistantes à la déchirure). Ces pâtes de meule n'ont que de meilleures blancheurs (58-59 % contre 37-40 % pour les PMR de mélèze) et opacités. Les copeaux de mélèze sont difficiles à raffiner et demandent énormément d'énergie par rapport à l'épinette (environ 30-35 % plus d'énergie pour des PMR) [14]. A l'addition de pression, les pâtes thermomécaniques (PTM) de mélèze éprouvent de la difficulté à produire de la fibrillation ou de bonnes liaisons inter-fibres qui seraient nécessaires à l'obtention de résistances mécaniques élevées [12]. Parmi les diverses essences de mélèze, des résultats récents signalent que les espèces japonaise et européenne d'âge juvénile ne peuvent rivaliser le mélèze laricin au niveau de la longueur de rupture pour des PTM, mais elles consomment moins d'énergie pour l'obtention d'un indice d'égouttage donné car leurs lamelles mitoyennes plus minces facilitent la séparation des fibres [22]. Autre inconvénient, le bois de mélèze offre de faibles blancheurs pour une PTM comparativement au bois de sapin et d'épinette (30-38 %

versus 56%) [14]. Un traitement chimique s'impose afin de ramollir les fibres, d'améliorer les conditions de raffinage et les caractéristiques papetières.

Des pâtes fabriquées par le procédé chimiothermomécanique (PCTM) sont désavantagées par leur faible blancheur, 30 à 40 %, bien qu'elles puissent posséder de bonnes propriétés mécaniques [12]. En résumé, de toutes les pâtes produites à haut rendement (PMR, PTM, PCTM, PCM) à partir du mélèze laricin, la pâte conçue par le procédé chimicomécanique (PCM) semble fournir les résultats les plus intéressants au niveau des résistances mécaniques [11,12,27]. C'est pourquoi nous avons jugé valable de poursuivre les travaux avec les mélèzes japonais et européen par le procédé chimicomécanique de mise en pâte. Ce procédé fut le seul à être employé au cours du présent projet de recherche.

#### 3.4.1 Procédé de mise en pâte chimicomécanique

Ce procédé chimicomécanique de mise en pâte permet d'atteindre de hauts rendements variant entre 80 et 92 % [10,11,14].

Une pâte chimicomécanique s'effectue selon certaines conditions déjà préétablies. Ces conditions spécifiques apparaissent surtout lors de la cuisson des copeaux où une concentration d'agent chimique doit y être ajoutée en solution, ordinairement du sulfite de sodium,  $\text{Na}_2\text{SO}_3$ , avec ou sans soude caustique; c'est l'étape de la sulfonation. Une température sera

maintenue constante à l'intérieur du lessiveur pour une période de temps choisie. Par la suite, une opération de raffinage sous pression atmosphérique aura pour effet de travailler la pâte, de dégager les fibres les unes des autres afin d'obtenir les caractéristiques papetières désirées. Ces deux parties sont traitées distinctement ci-dessous.

#### 3.4.1.1 La sulfonation et ses effets

La phase première de la sulfonation consiste à introduire dans les copeaux la liqueur de sulfite de sodium pour qu'elle puisse atteindre la lamelle mitoyenne [29] constituée de lignine. Le soufre dissout dans la liqueur de sulfite forme un acide sulfonique lorsqu'il réagit avec la lignine [38]. La sulfonation implique donc des groupes ioniques comme la lignine hydrophobique, laquelle devient plus hydrophile après la réaction chimique [37]. Le but n'est pas de dissoudre la lignine mais bien de la sulfoner, de la ramollir pour ainsi améliorer les qualités de la fibre, la rendre flexible; état acquis par l'introduction d'acide sulfonique hydrophile [29]. L'addition de sulfite de sodium, dans une phase de prétraitement pour une pâte chimicomécanique, facilite la séparation des fibres du bois au raffinage. La pâte comportera des fibres de fractions R14 et R28 en plus grand nombre, des fractions R200 et P200 plus faibles ainsi qu'une diminution dans le taux de bûchettes. D'autre part, une pâte sulfonée, ou traitée, possède des résistances mécaniques supérieures mais requiert plus d'énergie spécifique qu'une pâte

non traitée [5,24,29] pour l'obtention d'un même indice d'égouttage dû à l'action de protection causée par le sulfite sur la fibre.

En cuisson acide, la perte de rendement et la dissolution de la lignine sont indépendantes de la concentration en  $\text{SO}_2$  [29]. C'est la faible valeur du pH qui a pour effet d'accélérer la dissolution de la lignine et de diminuer le rendement en pâte. Par contre à pH alcalin, le taux de sulfonation dépend de la concentration totale en  $\text{SO}_2$ , ainsi une charge élevée de sulfite tend à accroître la flexibilité et la compressibilité des fibres, donc d'améliorer les propriétés du papier [16,29]. La sulfonation est ainsi reliée directement au pH de la solution sulfitique. A pH alcalin, elle en est favorisée au détriment du rendement et de la blancheur. La sulfonation des copeaux ne procure aucune amélioration de la surface spécifique des fibres, l'explication de l'élévation des forces mécaniques du papier due à de meilleures liaisons inter-fibres ne provient que de l'augmentation de la souplesse et de la cohésion des longues fibres conservées (R14 et R28) lors du raffinage [28].

Un autre agent chimique, en addition au sulfite de sodium, utilisé lors d'une cuisson de PCM est la soude caustique,  $\text{NaOH}$ . Ce composé permet à la cellulose d'atteindre un certain gonflement qui favorisera l'introduction de la liqueur sulfitique [30]. Il est également employé pour rehausser le pH de la liqueur de sulfite afin de cuire les copeaux en milieu basique. La soude caustique, comme le sulfite, fait chûter considérablement la

blancheur des pâtes produites à partir de mélèze [22].

Au cours du procédé de mise en pâte chimicomécanique, la consommation d'agent chimique lors de la cuisson est faible, donc il ne s'avère pas important, ni rentable, de récupérer les produits chimiques de la liqueur usée [37].

#### 3.4.1.2 Le raffinage et ses effets

Suite à la sulfonation des copeaux, le passage de ceux-ci à travers un raffineur constitue la deuxième étape d'une pâte chimicomécanique. Cette seconde étape dépend grandement de la première, par exemple la sulfonation d'une PCM est moins intense que celle d'une pâte NSSC (Neutral Sulphite Semichemical), ce qui lui vaudra un apport supérieur d'énergie lors du raffinage pour la séparation des fibres [37]. Introduits dans le raffineur composé de deux disques métalliques, dont l'un est rotatif et l'autre statique, les copeaux auront à subir successivement le fractionnement, le défibrage et la fibrillation en fonction de leur position relative à la surface des disques. Par un mouvement centrifuge, ils seront d'abord en contact avec une zone de barres grossières pour être fractionnés et subdivisés en bûchettes. Ces dernières passeront dans une zone intermédiaire où l'espace entre les disques et les barres retrace afin d'effectuer un travail plus important, puis la fibre prise isolément traversera ensuite la zone située à l'extrémité périphérique des disques avant d'être éjectée du raffineur. Cette dernière zone de raffinage

permettra à la fibre d'atteindre, par frottement intensif avec les barres et les autres fibres, un état chevelu. Les fibrilles rattachées à la fibre-mère faciliteront l'enchevêtrement et la résistance inter-fibre lors de la formation du papier.

Le raffinage individualise les fibres, les fibrille ou parfois les sectionne (affecte négativement la déchirure); il en augmente la surface spécifique. L'énergie consommée lors du raffinage peut conduire à une délamination interne de la fibre où des fissures sont introduites à l'intérieur des parois cellulaires dû au stress imposé [30]. Un raffinage adéquat tentera d'effiloche la fibre afin de maximiser les propriétés papetières désirées, par contre, si son action est trop intensive, il la cassera et les propriétés en seront diminuées. Ce niveau de qualité est attribuable à certains paramètres que l'on peut contrôler lors de l'opération de raffinage. L'écartement entre les disques du raffineur, la concentration du matériel au raffinage, l'addition de pression de vapeur (PTM) et l'énergie spécifique déterminent les principaux paramètres variables pour satisfaire l'indice d'égouttage des échantillons de pâte à produire.

Pour un procédé chimicomécanique, l'ajout de sulfite de sodium occasionne le ramollissement de la lignine permettant à la fibre d'être plus flexible lors de son passage entre les disques du raffineur. On croit également que ce composé chimique, introduit au niveau de la cuisson, agit comme agent lubrifiant entre la fibre et les disques. Devenue plus flexible et huileuse,

la fibre traverse la zone de barres fines et rapprochées sans trop subir de choc et de cisaillement pour ensuite être éjectée du raffineur dans presque toute sa longueur. Le raffinage n'aura ainsi qu'aplati et fibrillé la fibre sans la raccourcir. Ce phénomène explique la portion importante de fibres longues que l'on retrouve dans une PCM. L'ajout de cet agent chimique augmente donc la consommation d'énergie de raffinage d'environ 30% par rapport à une PMR pour un même indice d'égouttage de 400 ml par exemple [14]. Une PTM de mélèze demande à peu près la même énergie qu'une PCM, et une PCTM exige 20% de plus d'énergie de raffinage que cette même PCM.



## CHAPITRE 4

### TECHNIQUES EXPERIMENTALES

#### 4.1 Spécifications et provenances des arbres

Les mélèzes japonais et européen utilisés au cours de ce projet de recherche furent obtenus d'une plantation expérimentale du Ministère de l'Energie et des Ressources située à Drummondville au Québec. Ils furent abattus à l'âge de 40 ans. Par contre les épinettes noires servant d'essence de comparaison provenaient d'un peuplement naturel et étaient âgées de 35 ans environ. Les billots ont été livrés au Centre de recherche en pâtes et papiers en longueur de 1,22 m.

#### 4.2 Mise en copeaux et classification

C'est à la station forestière de Duchesnay, propriété du Ministère de l'Energie et des Ressources du Québec située dans le comté de Porneuf, que les billes de bois ont subi mécaniquement les opérations d'écorçage et de mise en copeaux.

Par la suite, les copeaux ont été classés selon leur épaisseur afin d'uniformiser l'effet des agents chimiques lors de la cuisson. Un copeau trop épais empêche une imprégnation profonde de la liqueur de cuisson jusqu'en son centre, puis un copeau trop petit ou trop mince possède des fibres coupées et de

faible qualité influençant négativement les caractéristiques du papier. Pour éliminer ces deux types de rejets, nous avons utilisé un classeur de type RADER M-2215 qui opère selon l'épaisseur des copeaux. La portion acceptée regroupait des copeaux dont l'épaisseur variait entre 2 et 6 mm.

Afin de protéger l'équipement utilisé lors de la mise en pâte, un lavage manuel des copeaux a dû être effectué. Ces derniers ont été plongés dans un bassin d'eau laissant choir au fond les particules lourdes et les saletés telles la terre, le sable, les particules métalliques et les noeuds de bois (densité supérieure). En plus d'homogénéiser l'humidité des copeaux, il était à prévoir que les copeaux des mélèzes japonais et européen allaient laisser une certaine proportion de leurs matières extractibles solubles à l'eau durant ce trempage; les arabinogalactoses, par exemple (voir section 3.3).

#### 4.3 Fabrication des pâtes chimicomécaniques

Une pâte chimicomécanique est fabriquée à partir de copeaux préalablement cuits qui seront mis en pâte par une unité de raffinage sous pression atmosphérique.

##### 4.3.1 La cuisson des copeaux

Les copeaux de bois sont imprégnés d'une liqueur blanche sulfiteuse (50 g/L de  $\text{Na}_2\text{SO}_3$ ) avant d'être insérés dans un

lessiveur pour y être cuits. Toutes les cuissons ont été réalisées dans un lessiveur en discontinu (FIGURE 1) dans lequel la liqueur est recirculée et passe par un échangeur de chaleur pour maintenir une température constante, cet échangeur de chaleur est chauffé directement par une injection de vapeur. Le système est en quelque sorte un réservoir cylindrique dans lequel on incorpore les copeaux et la liqueur. Celle-ci additionnée à l'effet de la vapeur réagit avec le bois de façon à dissoudre ou ramollir la lignine et de mettre certains produits extractibles en solution. D'une capacité de 4 kg, 32 L, de copeaux secs, ce lessiveur appartient et est localisé au Pavillon de la Papeterie du Cégep de Trois-Rivières.

Bien instrumenté, le tableau de contrôle nous permettait d'observer à l'aide de graphes les temps de montée de la température avant d'atteindre un palier constant choisi.

Après la cuisson, les copeaux des trois essences ont été lavés dans une centrifugeuse. Un échantillon pesant près de 300 g et ce pour chacune des cuissons, fut défibré à l'aide d'un mélangeur de 4 L (WARING BLENDOR), lavé et séché afin de déterminer le rendement.

#### 4.3.2 Le raffinage des copeaux

La mise en pâte des copeaux chimiquement traités s'est effectuée au moyen de l'unité pilote SUNDS DEFIBRATOR 300 CD du Centre de recherche en pâtes et papiers de l'Université du

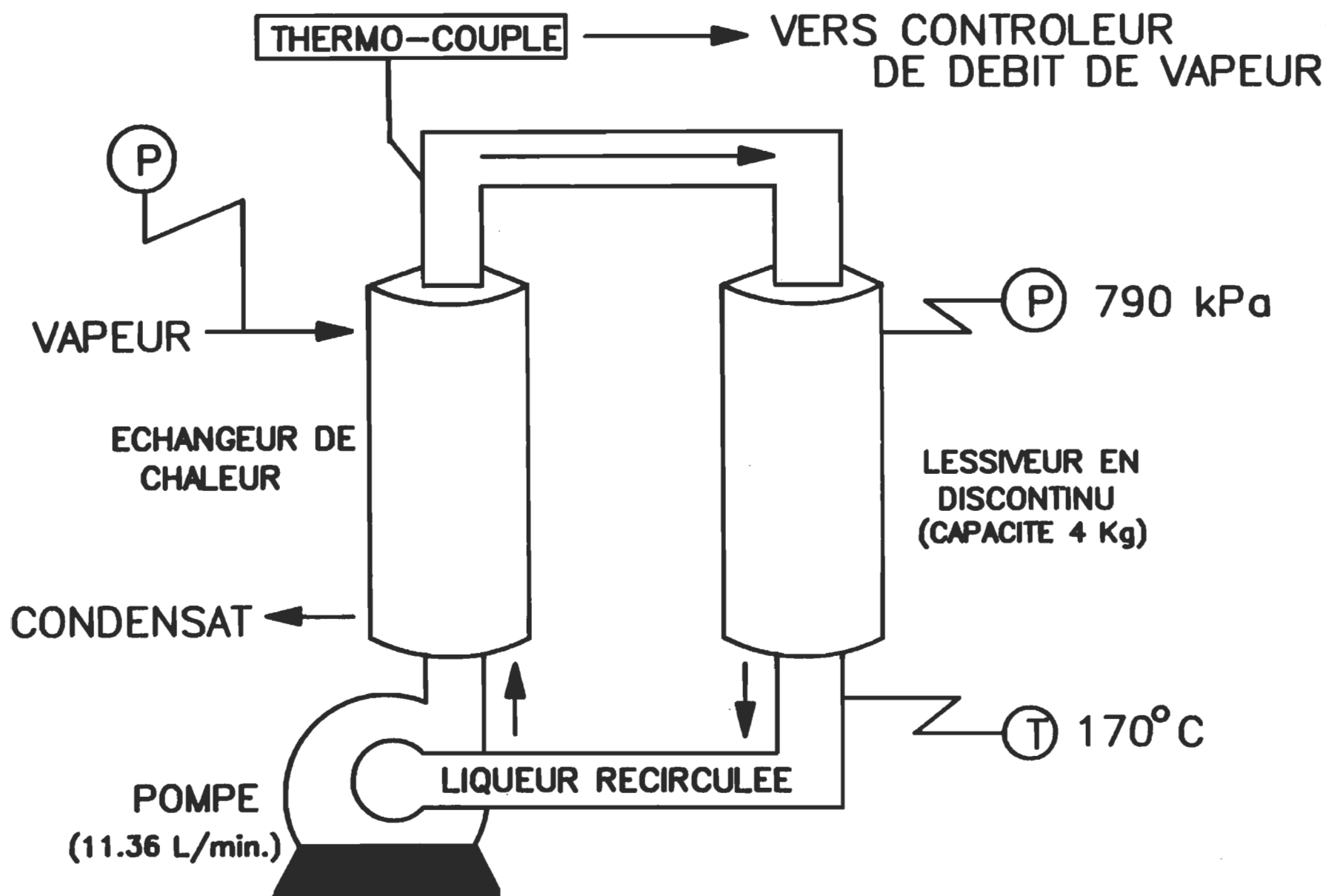


FIGURE 1 : LESSIVEUR DE 4KG, CEGEP TROIS-RIVIERES

Québec à Trois-Rivières (FIGURE 2). Bien qu'il soit constitué de différentes parties pour la production de divers types de pâtes mécaniques, nous n'avons utilisé que le raffineur pour l'élaboration de nos échantillons de pâte. Les autres parties qui complètent l'unité sont le système d'alimentation, l'imprégnateur et le lessiveur. L'imprégnateur et le lessiveur de l'unité n'ont pas été employés pour produire nos pâtes chimicomécaniques car l'imprégnation des copeaux s'est réalisée par une simple immersion à température de pièce et les cuissons, comme déjà mentionné, avec l'aide du lessiveur en discontinu du Cégep.

Les copeaux étant cuits et opérant sous des conditions de raffinage à pression atmosphérique, le système d'alimentation de l'unité pilote fut substitué par un convoyeur à courroie sur lequel les copeaux sont amenés, à 32 % de consistance environ, à l'embouchure d'un entonnoir circulaire. Au terme de leur chute, ils sont entraînés par une vis sans fin aux disques du raffineur. D'ordinaire, lorsque le système d'alimentation conventionnel de l'unité est utilisé, il sert à préchauffer les copeaux par vapeur pour faciliter l'extraction d'air et l'infiltration de la liqueur de cuisson lors du séjour à l'intérieur de l'imprégnateur.

Comme dernière opération, un raffinage à pression atmosphérique fut appliqué sur les copeaux traités à partir du raffineur de marque SUNDS DEFIBRATOR 300 CD dont la capacité de production journalière peut atteindre deux tonnes métriques de pâte sèche. Ce modèle se caractérise par un ensemble de deux disques plats, l'un fixe et l'autre rotatif, mesurant chacun 300

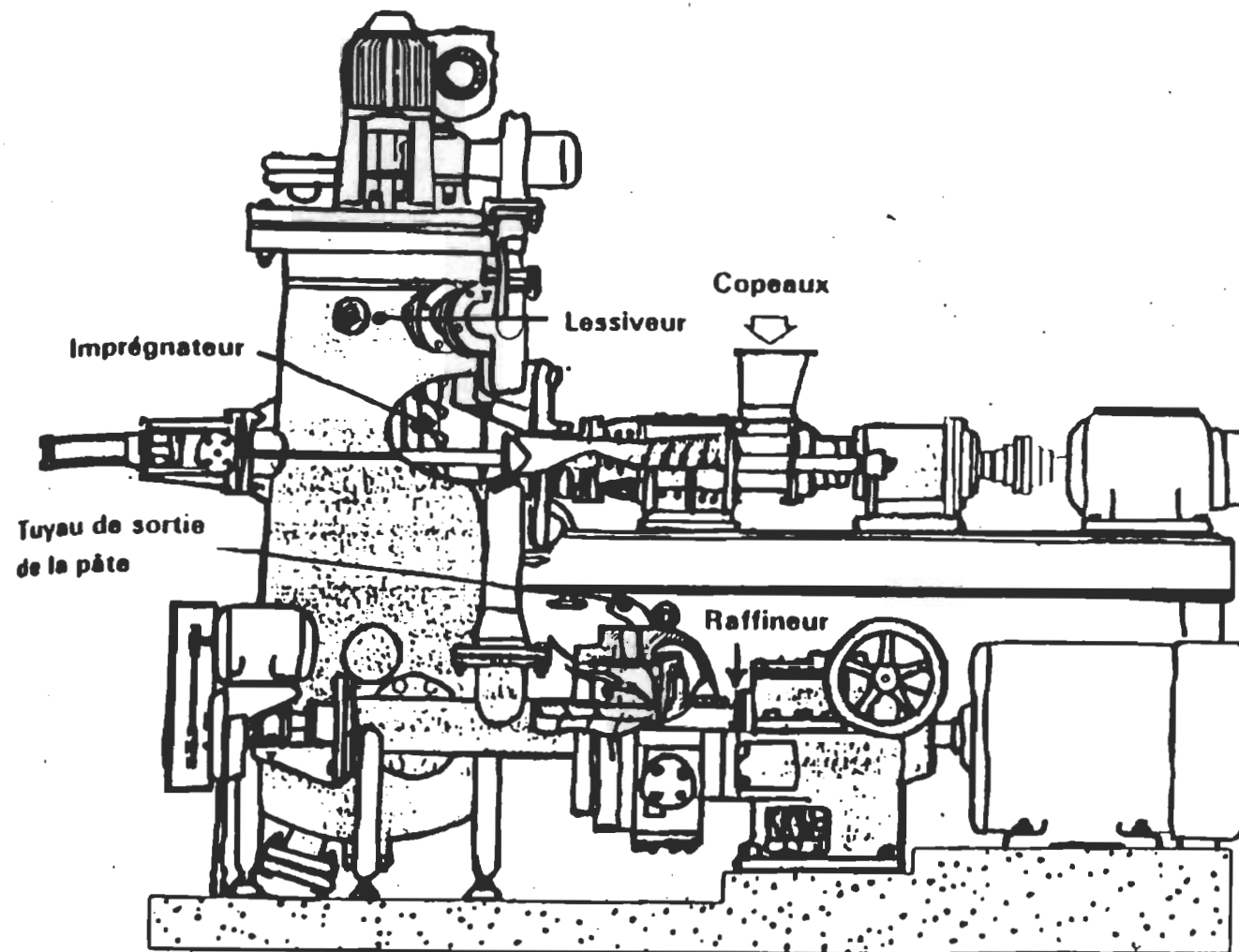


FIGURE 2 : UNITE PILOTE DE RAFFINAGE SUNDS CD300

mm de diamètre, puis à la périphérie de ceux-ci se trouvent des disques coniques de 50 mm de largeur. Ce sont ces derniers qui complètent l'opération de raffinage sur la pâte.

Pour mieux varier les conditions du raffinage ou pour satisfaire les caractéristiques désirées sur nos échantillons de pâte, divers contrôles viennent s'ajouter à l'unité pilote de raffinage. Par exemple, un système de dilution par addition d'eau facilite le travail des disques et permet l'obtention d'une concentration spécifique de notre pâte à la sortie du raffineur. L'écartement, entre les disques plats ou coniques, peut s'ajuster indépendamment augmentant ainsi le jeu sur lequel l'opérateur peut faire varier l'intensité du raffinage sur la fibre.

A la suite d'un premier raffinage à pression atmosphérique, si l'indice d'égouttage d'une pâte ne fut pas adéquat ou si la pâte fut trop grossière, un second stage de raffinage également à pression atmosphérique a été exercé de façon à diminuer cet indice vers une valeur acceptable. Dans ce cas, l'énergie spécifique totale attribuable à un échantillon de pâte donné fut la somme de l'énergie fournie dans chacun des stages.

Les pâtes ainsi produites ont ensuite été introduites à l'intérieur d'une gaine de coton pour conserver les fibres fines lors du lavage dans une centrifugeuse (laveuse automatique adaptée) afin d'y extraire les résidus de liqueur sulfitique encore présents.

#### 4.4 Elaboration du plan expérimental pour la PCM

Pour ce projet de recherche, l'évaluation des aptitudes des mélèzes japonais et européen (comparaison avec l'épinette noire) à la mise en pâte à très haut rendement par le procédé au sulfite alcalin ne fait intervenir qu'un seul type de pâte, soit la pâte chimicomécanique (PCM). Pour déterminer les conditions optimales de cuisson et de défibrage, nous avons fait varier que le temps de cuisson. Tout autre paramètre étant gardé constant afin de sauvegarder un rendement élevé; 80-90 %. Certains auteurs [1,5,11,12] soulignent que les propriétés mécaniques des pâtes de mélèze semblent être améliorées par ce type de mise en pâte faisant intervenir une cuisson des copeaux au sulfite neutre ou alcalin.

Les liqueurs de cuisson ont été produites en mettant en solution dans l'eau certains agents chimiques. Le sulfite de sodium,  $\text{Na}_2\text{SO}_3$ , est le seul agent principal de réaction toujours présent, par contre afin d'obtenir une liqueur alcaline, le pH de la solution fut ajusté à 12 avec une solution d'hydroxyde de sodium,  $\text{NaOH}$ . Par un pH élevé, on protège l'holocellulose des coupures hydrolytiques et on favorise la sulfonation des copeaux.

Préalablement à la cuisson, les copeaux de chacune des trois essences ont été répartis en échantillons de 4 kg secs. Nous leur avons fait subir une imprégnation dans une liqueur contenant 50 g/L de  $\text{Na}_2\text{SO}_3$  (ratio liqueur:bois de 5:1, ce qui fait une application de 25 % de sulfite sur la base sèche du bois) durant 16 heures environ pour permettre aux copeaux de bois de bien



absorber le liquide car le temps de montée de la température lors de la cuisson est aussi très court. Cette imprégnation s'est effectuée à une température ambiante, soit 22 °C.

La liqueur et les copeaux introduits dans le lessiveur en discontinu, on porta la température à 170 °C. Le temps requis pour atteindre ce plateau était de 13 min. Le temps de cuisson étant la seule variable du procédé à considérer, nous l'avons fait varier de 20 à 80 min. en fixant les temps intermédiaires à 40 et 60 min., ce qui fait une variation de 4 temps de cuisson pour une température maintenue constamment à 170 °C.

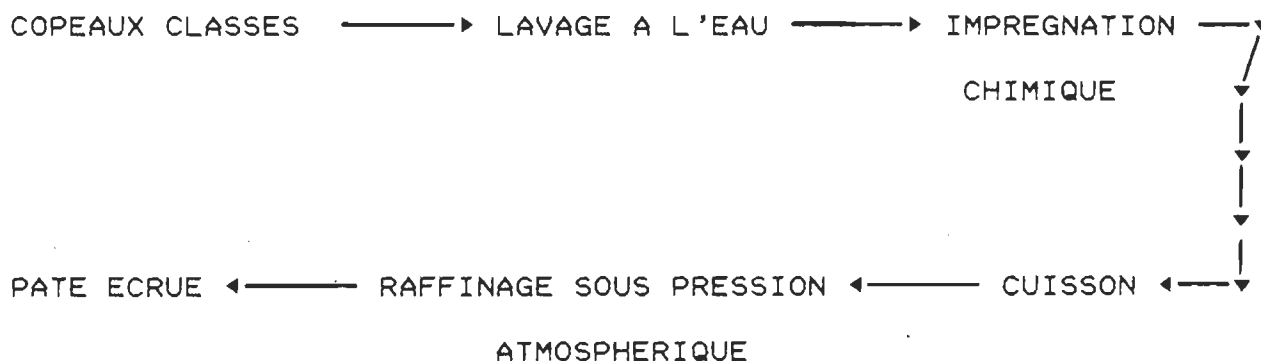
Lors du raffinage atmosphérique des copeaux, c'est-à-dire réalisé à une température voisine de 100 °C, nous avons tenté d'obtenir 3 ou 4 échantillons de pâte à différents niveaux d'énergie spécifique en faisant varier l'écartement des disques plats et coniques, et ce , tout en conservant un taux de production le plus régulier possible. Chaque échantillon de pâte représente 30 secondes de production au raffineur. La concentration de la pâte à la sortie du raffineur se situe auprès de 16 %.

La figure 3-A regroupe les conditions expérimentales des pâtes chimicomécaniques de raffineur.

Afin de déterminer le rendement par équation mathématique, le carbone total contenu dans la liqueur usée fut mesuré par un appareil IONICS TOTAL ORGANIC CARBON ANALYZER, modèle 445. D'abord une courbe de référence (voir FIGURE 3-B) a été établie

en utilisant une solution standard (1000 ppm de carbone total) de phthalate de potassium ( $\text{KHC}_8\text{H}_4\text{O}_4$ ). Les résultats graphiques étaient alors obtenus avec des solutions variées de liqueur usée. La concentration du carbone total de chaque échantillon fut estimée à partir de la courbe de référence puis répétée 3-5 fois pour préciser l'analyse.

FIGURE 3-A : ETAPES EXPERIMENTALES DES PCMR



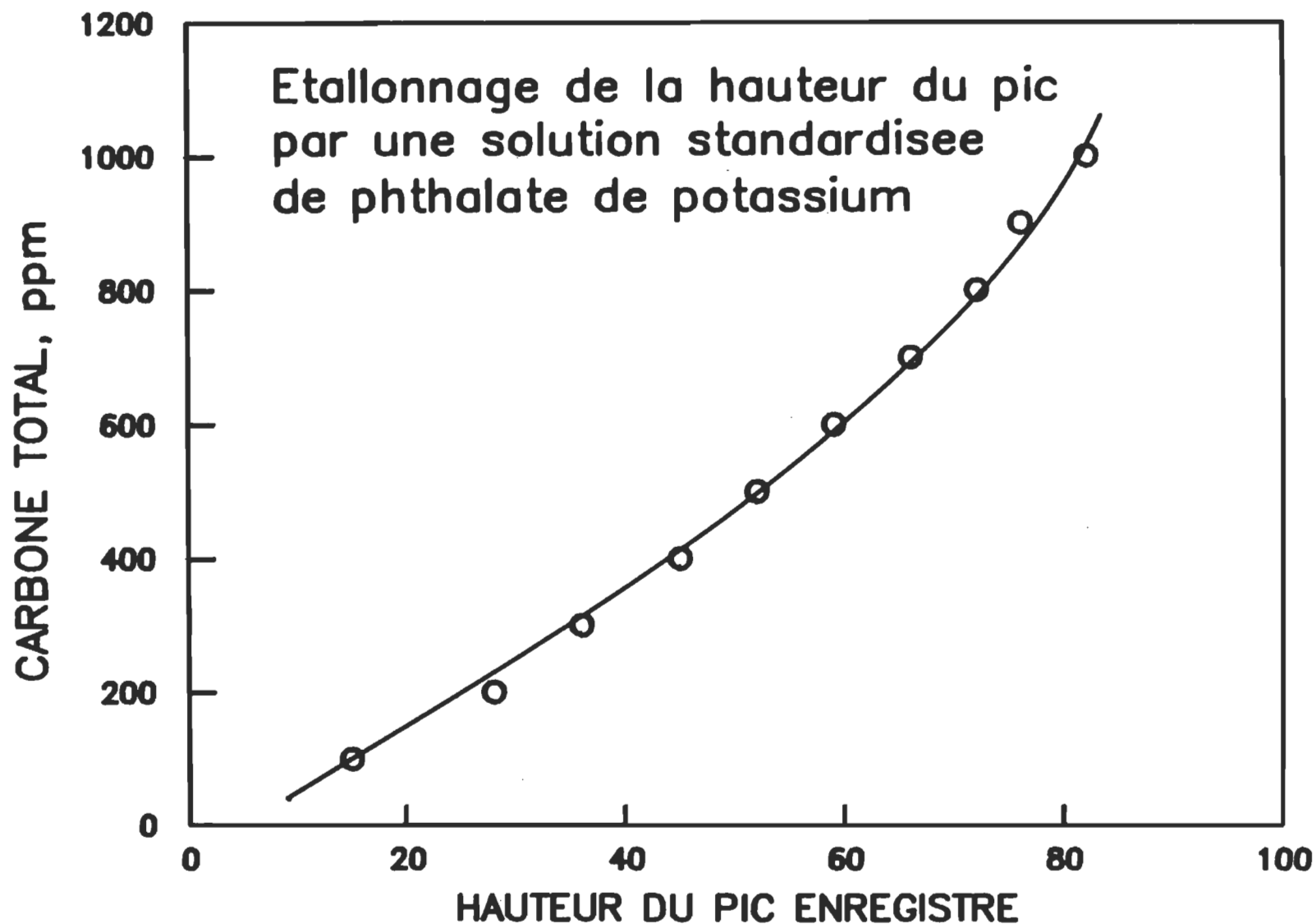


FIGURE 3B : ETALONNAGE DE LA COURBE DU CARBONE TOTAL

#### 4.5 Utilisation des méthodes et essais standardisés selon TAPPI et ACPPP

Les échantillons de chacune des pâtes produites ont été désintégrés à l'eau chaude, température de 90 °C, à l'aide d'un appareil DOMTAR afin d'éliminer la latence des fibres et de bien homogénéiser la solution fibreuse. Cette solution servit à fabriquer des formettes standard de papier, 60 g/m<sup>2</sup>, qui permettaient l'expérimentation des mesures suivantes; la longueur de rupture, l'indice de déchirure, l'indice d'éclatement, la blancheur, l'opacité, le coefficient de diffusion de la lumière et le volume spécifique. Ces caractéristiques ont été déterminées selon les méthodes et les normes de l'ACPPP et de TAPPI. Toutes les mesures relatives aux paramètres mécaniques ou optiques ont été prises avec les appareils disponibles du Centre de recherche en pâtes et papiers de l'UQTR, lesquels sont situés à l'intérieur d'une chambre fermée où la température est constante à 23 °C et l'humidité relative maintenue à 50 %.

Le tableau 1 énumère l'ensemble des normes utilisées.

TABLEAU 1

Méthodes normalisées selon ACPPP et TAPPI

<u>Essai réalisé</u>	<u>Norme TAPPI</u>	<u>Norme ACPPP</u>
Consistance de la pâte.	-	D.16
Enlèvement de la latence.	-	C.8P
Indice d'égouttage (CSF).	T227 os-58	-
Classification Bauer McNett.	T223 os-75	-
Confection des feuilles.	-	C.4
Conditions contrôlées de la chambre.	T402 os-70	-
Echantillonnage.	T220 os-71	-
Essais physiques des		
formettes de pâte.	-	D.12
Epaisseur.	-	D.4
Blancheur ELREPHO.	T452 os-77	-
Opacité.	T425 os-77	-
Coefficient de diffusion de la lumière.	T425 os-75	-
Longueur de rupture.	T494 os-70	-
Indice d'éclatement MULLEN.	T403 os-76	-
Indice déchirure ELMENDORF.	T414 os-65	-

## CHAPITRE 5

### RESULTATS ET DISCUSSIONS

#### 5.1 Rendement des PCM

D'après la littérature, une pâte chimicomécanique possède un rendement entre 80 et 95 % [28,32,37]. Par contre divers paramètres influencent ce taux mais toujours de façon à respecter le voisinage de ces deux limites. Le paramètre d'importance majeure est l'essence de bois avec laquelle on effectue les cuissons du procédé. Dans notre étude, les essences de mélèze utilisées contiennent énormément de matières extractibles contrairement à d'autres essences commerciales. Ces matières extractibles peuvent être facilement solubilisées dans l'eau. Du fait qu'elles représentent environ 10 % du bois, les rendements obtenus avec les mélèzes ne peuvent excéder 90 % et ce, seulement par une simple extraction à l'eau. C'est pourquoi le mélèze donne un rendement inférieur à celui des autres conifères.

La figure 4 montre que les mélèzes de plantation européen et japonais, comme le mélèze laricin [14,44], ne font pas exception à la règle lors d'une cuisson au sulfite alcalin. Comme il était prévisible, l'épinette noire a donné un rendement supérieur variant entre 85 et 89 % dépendamment du temps de cuisson. Le mélèze japonais a démontré un rendement particulièrement faible

(78 à 84 %), soit près de 6 à 8 points en moins que l'épinette et environ 3 points en dessous du mélèze européen (82 à 87 %).

Cette différence de rendement entre les deux mélèzes s'explique par une plus grande proportion de canaux résinifères présents chez l'espèce japonaise d'où un taux plus élevé de produits extractibles solubilisés. Cependant ces faibles rendements qui caractérisent les mélèzes ne devraient pas empêcher ou diminuer leur potentiel d'utilisation comme ressource de matière première car ces essences forestières peuvent croître jusqu'à trois fois plus rapidement que les autres essences commerciales couramment utilisées, puis leur bois est environ 25 % plus dense que l'ensemble des résineux. Ce qui compense équitablement leur faible rendement lors du procédé chimicomécanique.

Nous constatons également que le rendement en pâte est étroitement corrélé au taux de carbone total contenu dans la liqueur usée après cuisson. La figure 5 représente cette corrélation d'après laquelle nous pouvons prédire précisément le rendement en pâte par l'utilisation de l'équation du premier degré qui relie linéairement les données du rendement à celles du taux de carbone total. Cette équation est  $Y = 95,56 - 0,61X$ . Le rendement se retrouve en ordonnée (Y) et le taux de carbone total en abscisse (X). Le coefficient de corrélation,  $r$ , est de -0,93. Il est quasi identique à celui trouvé par Tay et al. [34] qui ont travaillé avec des PCM d'épinette noire. Il est normal de retrouver un taux de carbone total plus élevé lorsque le

rendement est plus faible dû à une plus grande solubilisation de la lignine et de quelques carbohydrates.

Le rendement d'une pâte chimicomécanique peut dépendre de diverses autres variables, le pH initial de la liqueur par exemple. Certains auteurs [35,38,39,41] qui ont regroupé leurs efforts sur des pâtes chimicomécaniques affirment qu'une liqueur sulfitique dont le pH est alcalin favorise un rendement élevé contrairement à un pH acide car la dissolution des carbohydrates et de la lignine est plus facile en milieu acide [45]. Un pH élevé est toujours préférable car la sulfonation des copeaux est plus forte et le rendement plus haut [38], laissant croire à une certaine contradiction. Toutes nos pâtes ont été réalisées à pH 12 afin d'acquérir de hauts rendements, mais à différents temps de cuisson. Le pH final de la liqueur usée de chacune des cuissons redescendait vers une valeur de 8.

Le rendement est davantage affecté par une variation du temps de cuisson que par une variation de la température [33,35]. Lorsque la température augmente, le rendement en pâte est désavantagé car la sulfonation de la lignine est plus intense mais il semble que cette variable demeure le paramètre affectant le moins le rendement. Notre température de cuisson étant maintenue à 170 °C, le seul paramètre de l'étude que nous voulions surveiller, mises à part les essences de bois, était le temps de cuisson. En l'ayant fait varier de 20 à 80 min., une variation de 20 min. baissa le rendement d'environ 1 ou 2 points.



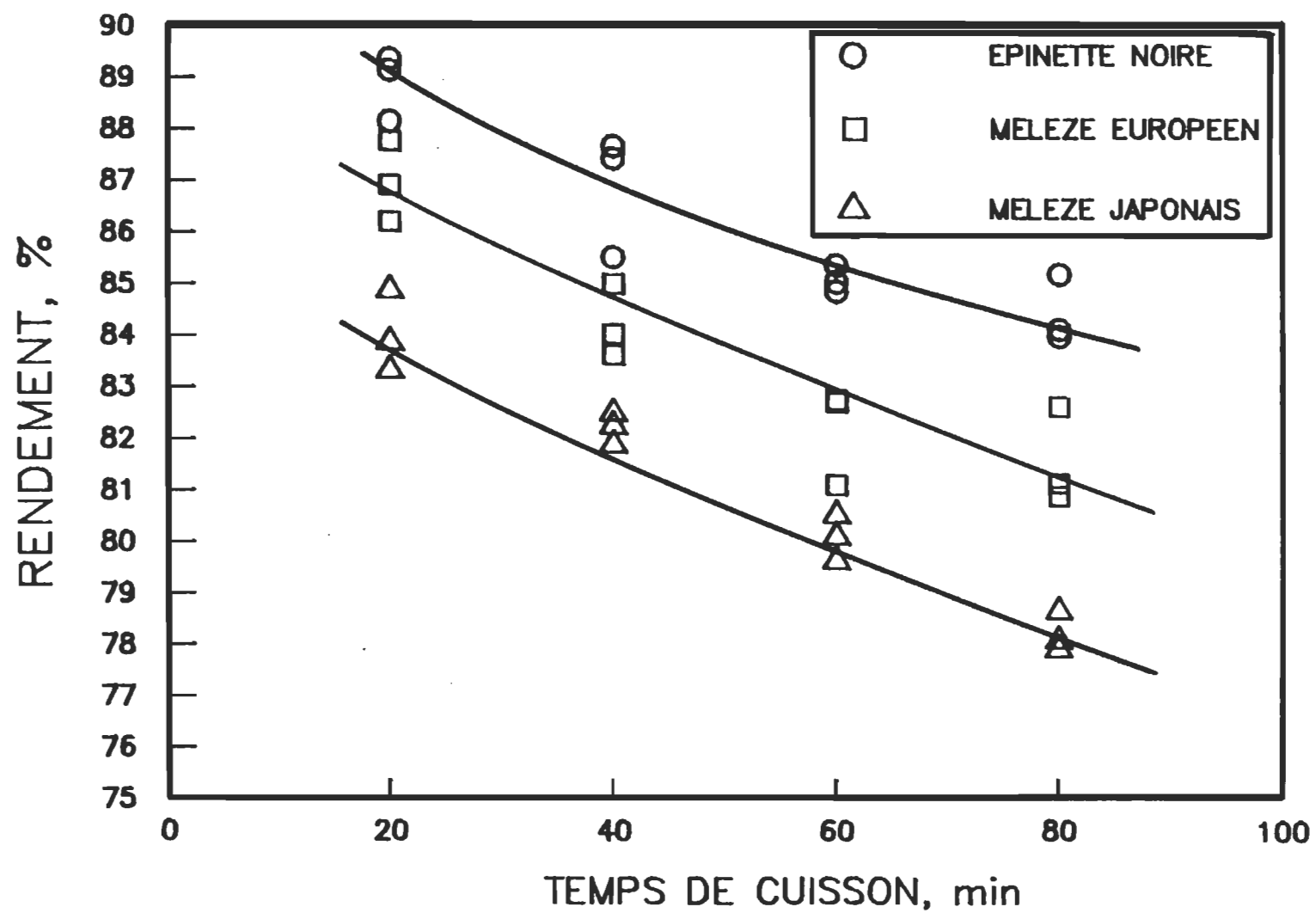


FIGURE 4 : RENDEMENT EN FONCTION DU TEMPS DE CUISSON

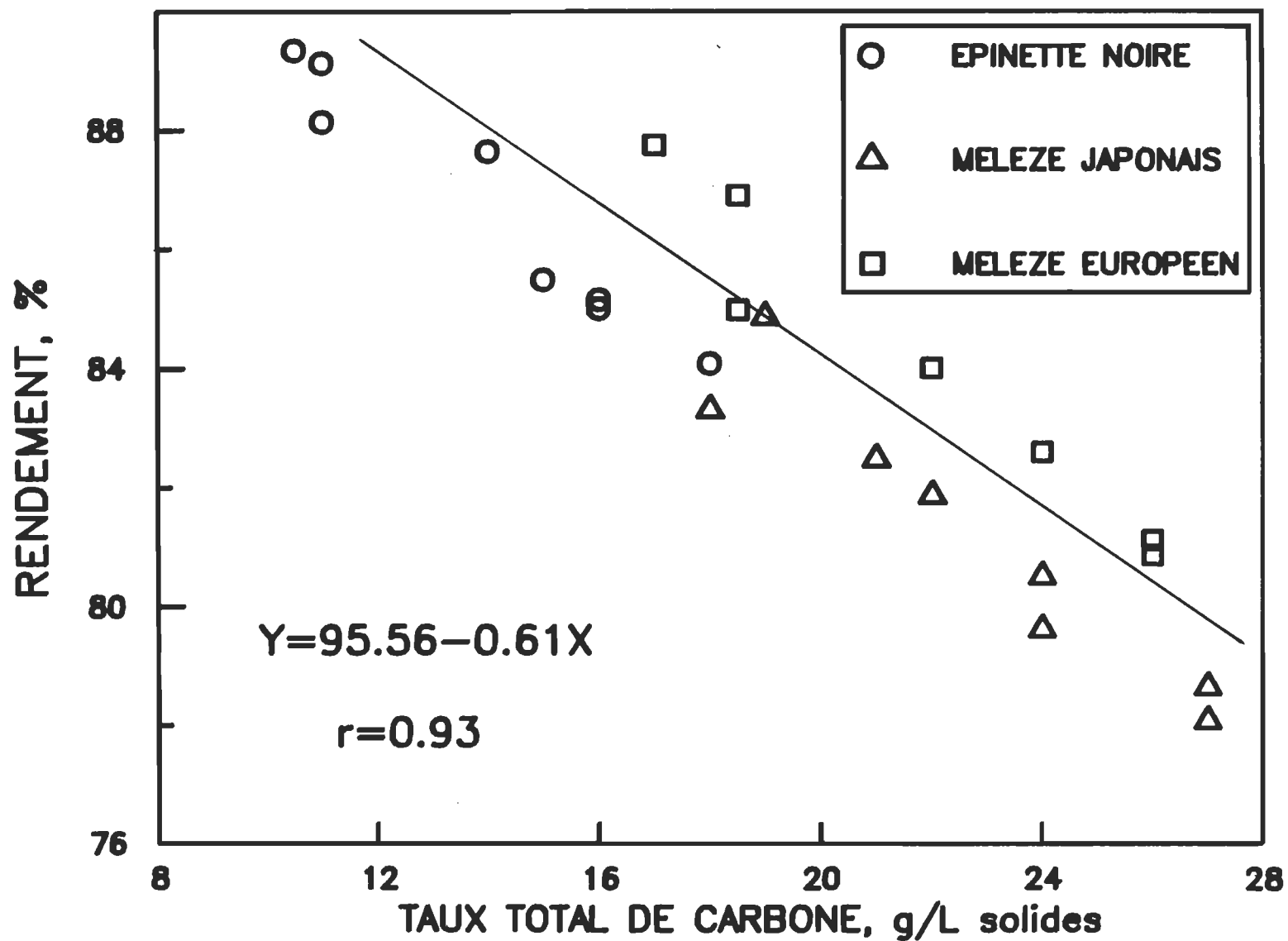


FIGURE 5 : RENDEMENT EN FONCTION DU TAUX TOTAL DE CARBONE

En se référant à d'autres auteurs, des travaux réalisés sur le mélèze laricin et sur l'épinette noire ont donné des rendements variant entre 80,5 et 91,5 % [34,39,40,41,43,44]. Ce qui confirme l'exactitude de nos résultats vis-à-vis les mélèzes exotiques.

Des pâtes chimicomécaniques obtenues à partir de pin gris ou de bois feuillus, comme le tremble, le bouleau et l'érable, ont fourni des valeurs de rendement assez bien comparables à celles du mélèze japonais ou européen [32,33,35,36]. Enfin il est important de mentionner que nos PCM, avec des rendements de 78 à 89 %, surclassent les pâtes industrielles NSSC (neutral sulphite semichemical) dont le rendement varie de 65 à 80 % [37] et surtout les pâtes Kraft auxquelles on rattache la seule aptitude de mise en pâte pour les mélèzes japonais et européen [42].

## 5.2 Conditions de raffinage

Le raffinage des copeaux cuits s'est effectué selon les conditions qui apparaissent au tableau 2 où l'on ne retrouve que les valeurs de quelques échantillons bien représentatifs des opérations. Nous avons fait un deuxième stage de raffinage sur la presque totalité des pâtes, le tableau nous révèle donc les paramètres mesurés de celui-ci. Comme nous l'avions mentionné à la section des techniques expérimentales, la concentration des pâtes à la sortie du raffineur fut maintenue autour de 16 %. Un volume d'eau de dilution et un apport en copeaux gardés constants

permirent de conserver cette valeur. Etant donné que nous devions opérer le raffineur sous pression atmosphérique, il était préférable selon Leboeuf [5] de travailler vers une telle concentration pour garder le raffineur stable et d'obtenir un échantillon de pâte homogène. Par contre, si nous avions opéré à des concentrations supérieures, la fibre située dans un matelas fibreux plus épais aurait été davantage protégée des coupures qu'exercent les barres des disques.

A partir de ce même tableau, nous pouvons remarquer que l'écartement des disques plats (DP) fut toujours plus faible que celui des disques coniques (DC), soit trois fois moins. On a de ce fait conservé un rapport régulier (DP/DC) de l'écartement des disques plats sur l'écartement des disques coniques d'environ 0,33. Ainsi les disques plats du raffineur ont pratiqué en grande partie l'action de fibrillation sur les fibres. La variation de cet écartement a produit la variation d'énergie spécifique appliquée sur les pâtes.

La production totale de pâte sèche a très peu varié entre les différentes essences. Elle se fixait régulièrement aux environs de 0,6 Kg/min., ce qui ne devrait pas influencer les comparaisons des propriétés physiques. La plupart des conditions de raffinage a été choisie selon certaines expériences antérieures afin d'obtenir une bonne plage de niveaux d'indices d'égouttage de la pâte produite.

<u>PCM</u>	<u>EPINETTE NOIRE</u>	<u>MELEZE JAPONAIS</u>	<u>MELEZE EUROPEEN</u>
PRESSION, KPa (*)	101	101	101
TEMPS, sec. (*)	30	30	30
EAU DP, L/min. (*)	0.76	0.76	0.76
EAU DC, L/min. (*)	0.38	0.38	0.38
CONCENTRATION SORTIE, % (#)	16.474	14.5	14.8
ECART DP, mm (#)	0.25	0.21	0.21
ECART DC, mm (#)	0.744	0.676	0.642
DP/DC (*)	0.33	0.31	0.33
PRODUCTION, kg/min. (#)	0.676	0.639	0.551

N.B. (\*) Valeur constante pour tout échantillon de pâte  
 (#) Valeur moyenne des échantillons les plus représentatifs

TABEAU 2 : CONDITIONS DE RAFFINAGE DES PCM

Nous verrons ultérieurement que les deux essences de mélèze ont consommé plus d'énergie que l'épinette noire pour atteindre un indice d'égouttage (CSF) donné (voir tableau 3).

### 5.3 Tendances générales des propriétés

Chacune des propriétés caractérisant un papier varie selon la nature du bois mais aussi selon les conditions de la cuisson et du raffinage effectués sur la pâte destinée à la réalisation de ce papier.

Le tableau 3 nous présente la variation de ces propriétés papetières pour un rendement en pâte de 85 %. En scrutant ce tableau, on observe rapidement une différence très marquée entre l'épinette noire, essence de comparaison, et les deux mélèzes exotiques. Cependant pour une même essence, lorsque l'énergie spécifique augmente, c'est-à-dire qu'on a exercé une réduction de l'écart entre les disques du raffineur, les valeurs de la longueur de rupture, de l'allongement, de l'énergie de rupture de même que celles de l'indice d'éclatement augmentent aussi. Le raffinage des fibres produit des fibrilles et des fines qui influencent la densité de la feuille. Ces fines et ces fibrilles ont beaucoup plus de facilité à créer des liaisons interfibres car les zones de contact deviennent plus nombreuses. La multiplication de ces liens renforce la feuille de papier et lui confère de bonnes propriétés physiques, sauf l'indice de

85 % RENDEMENT

MELEZE JAPONAIS

MELEZE EUROPEEN

EPINETTE NOIRE

PROPRIETES MECANIQUES

LONGUEUR DE RUPTURE, km	3.92–5.66	4.09–6.15	6.06–8.98
ENERGIE DE RUPTURE, cm·gf	583–867	604–1240	1033–2027
ALLONGEMENT, %	1.92–2.54	2.09–3.01	2.80–3.85
INDICE DE DECHIRURE, mN·m <sup>2</sup> /g	12.73–6.29	12.70–6.04	11.21–4.56
INDICE D'ECLATEMENT, kPa·m <sup>2</sup> /g	2.27–3.08	2.60–4.38	4.18–6.62
DENSITE, g/cm <sup>3</sup>	0.41–0.49	0.41–0.56	0.41–0.68

PROPRIETES OPTIQUES

BLANCHEUR, %	28.3–27.1	31.4–28.0	43.6–34.0
OPACITE, %	98.1–96.5	94.3–89.7	93.1–87.1
COEF.DIFF.LUMIERE, cm <sup>2</sup> /g	320–280	256–209	309–210
ENERGIE SPECIFIQUE, kW·h/t	1643–2538	1621–2664	1429–3169
MJ/kg	5.91–9.13	5.84–9.59	5.14–11.41
INDICE D'EGOUTTAGE, ml	592–72	628–53	703–73

TABLEAU 3 : CARACTERISTIQUES PAPETIERES DES PCM

déchirure qui lui dépend largement de la longueur moyenne des fibres. Conséquemment, la diminution de l'opacité et de la dispersion spécifique qui accompagne l'accroissement de la résistance à la rupture est causée d'abord et avant tout par la perte de dispersion de fibres longues et rigides, soit par la création d'un réseau fibreux plus dense ayant moins d'interfaces air-fibres pour affaiblir la quantité de lumière transmise [48]. La blancheur se comporte comme l'indice d'égouttage, elle diminue avec l'augmentation de l'énergie spécifique.

#### 5.4 Classification des fibres

Lors de la fabrication d'une pâte chimicomécanique, les conditions de la cuisson des copeaux influencent grandement la longueur moyenne des fibres après le raffinage de celles-ci. Etant donné que nous avons entrepris nos cuissons à un pH alcalin de 12, la sulfonation du bois était favorisée et rendait la fibre beaucoup plus flexible. Cette flexibilité sauvegarde la longueur de la fibre en l'empêchant d'être sectionnée lors de son passage entre les disques du raffineur et la soumet ainsi à une bonne fibrillation. Un taux élevé de fibres longues et bien gonflées, fibrillées, en résulte. Autrement dit, lorsque la sulfonation est réalisée dans des conditions acides, les pâtes donnent lieu à une faible sensibilité au raffinage et des effets défavorables surviennent sur les fibres, du sectionnement entraînant plus de fines et moins de fibrillation par exemple



[47]. Les fibrilles rattachées aux longues fibres compensent le faible pourcentage de fibres courtes ou coupées afin de former des feuilles avec de bonnes densités et de bonnes propriétés.

Une classification des fibres de nos pâtes devrait donc nous démontrer des fractions importantes de fibres longues (R14/28/48) comparativement aux fibres courtes (R200 et P200).

#### 5.4.1 Classification selon le rendement

En regroupant sur la figure 6 les tamis L14, L28 et L48 pour désigner la fraction de fibres longues puis les tamis L200 et P200 pour désigner la fraction de fibres courtes, on se rend compte que nos pâtes, et ce pour les trois essences étudiées, respectent considérablement la théorie que nous venons d'énoncer et qui se retrouve également dans la littérature [37,47]. Il est important de constater que les fractions de fibres retenues par le tamis L100 n'apparaissent pas sur le graphique car nous considérons que ces fibres sont de longueur intermédiaire. Ce qui explique l'écart entre les deux courbes d'une même essence.

A partir de cette figure, la démarcation entre les deux types de fractions est nettement définie mais ce qui est d'abord remarquable est la différence que l'on retrouve entre les trois espèces. Les pâtes de mélèze japonais et européen possèdent plus de fibres courtes que celles d'épinette noire. Par conséquent elles ont aussi moins de fibres longues pour une valeur de

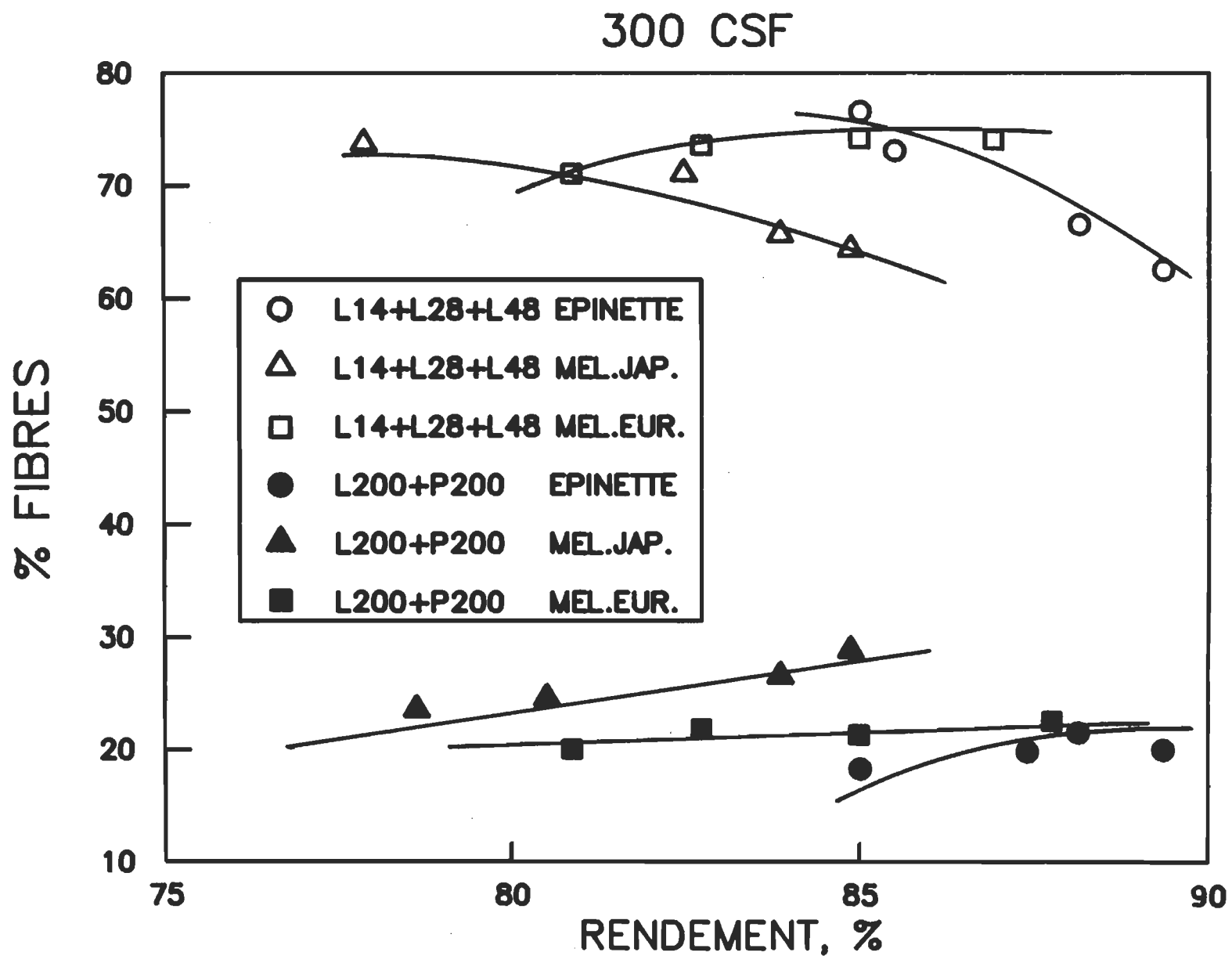


FIGURE 6 : DISTRIBUTION DES FIBRES EN FONCTION DU RENDEMENT

rendement donnée. Ce résultat s'explique par les différences existant entre les densités du bois et le contenu en matières extractibles de chacune des essences. Les mélèzes ayant un taux de produits extractibles considérables face à l'épinette sont nettement désavantagés lors de la cuisson des copeaux. Avec des conditions de cuisson identiques, et à rendement égal, la charge de réactifs chimiques contenus dans la liqueur sulfitique n'a à agir que sur la lignine de l'épinette noire tandis que sur les deux mélèzes les agents chimiques de réaction doivent aussi solubiliser les matières extractibles du bois. La fibre de l'épinette noire est donc plus sulfonée peu importe le niveau de rendement donné. Les résidus de lignine qui entourent la fibre d'épinette sont plus ramollis et cette dernière se retrouve dans un état de flexibilité supérieure. Le sectionnement que peut provoquer les disques du raffineur est de ce fait moins intense. La fibre d'épinette conserve ainsi une longueur moyenne plus grande que la fibre de mélèze.

De plus les parois des trachéides des mélèzes japonais et européen sont plus épaisses que les parois des trachéides de l'épinette noire, ce qui rend le bois de mélèze plus dense et ses fibres plus rigides. Cette rigidité peut occasionner un travail plus agressif des disques du raffineur et provoquer la cassure de certaines fibres. Le taux de fibres longues diminue au détriment du taux de fibres courtes.

L'écart des courbes que l'on observe entre les deux mélèzes

exotiques est également dû à ce que nous venons d'expliquer. Le mélèze du Japon contenant légèrement plus de matières extractibles et possédant aussi une densité légèrement supérieure que le mélèze d'Europe à l'âge adulte, procure une pâte chimicomécanique avec plus de fibres coupées et moins de fibres longues.

Le tableau 4 représente la distribution des fractions de fibres à l'aide de valeurs numériques. Ces chiffres nous indiquent les mêmes informations que les courbes graphiques. Selon nos conditions d'opération, la pâte chimicomécanique de mélèze japonais fut composée de 65,7 % de fibres longues, soit 8,3 % de moins que le mélèze européen et 13,7 % de moins que la pâte d'épinette. Par ailleurs, 26,9 % de la pâte fabriquée à partir du mélèze du Japon fut retenu ou a passé à travers le tamis 200 constituant la fraction des fibres courtes. Ce taux est de 27,5 % supérieur à celui du mélèze européen et de 43,1 % supérieur à celui de l'épinette noire. D'autres études réalisées dans des conditions de pH alcalin et avec des essences comme le bouleau blanc et le tremble ont rapporté des distributions de fractions de fibres comprises à l'intérieur de notre échelle de résultats variant entre 65 et 75 % de fibres longues et 15 à 25 % de fibres courtes par échantillon de pâte [47]. De telles valeurs reliées à la classification des fibres semblent être un caractère majeur d'une PCM.

TABLEAU 4 : DISTRIBUTION DES FRACTIONS DE FIBRES (%)  
( 85 % RENDEMENT – 300 CSF )

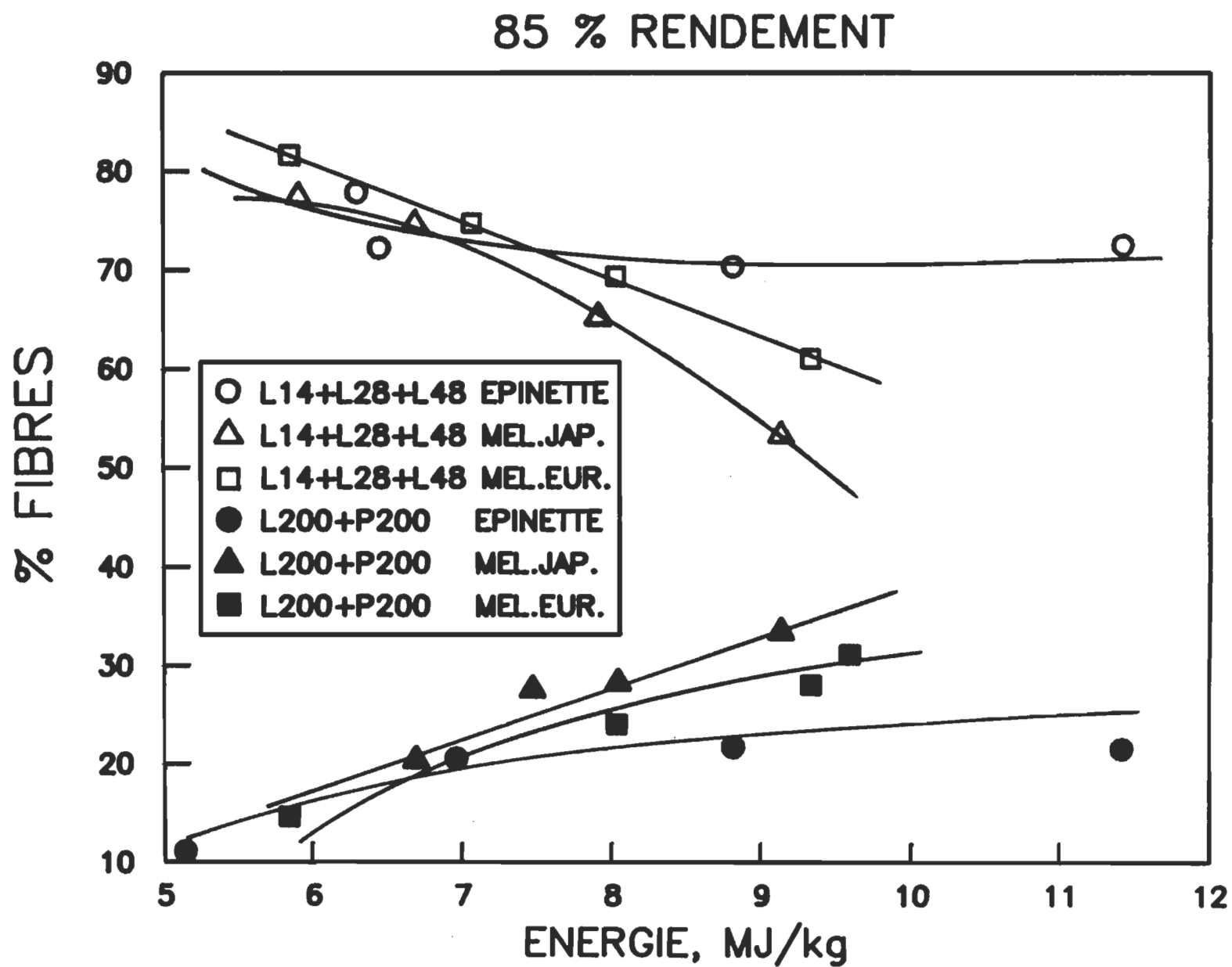
ESSENCE	VALEURS MOYENNES					
	L14	L28	L48	L100	L200	P200
EPINETTE NOIRE	25.1	26.2	23.4	6.4	4.8	14.0
MELEZE EUROPEEN	33.0	23.2	15.2	4.4	4.9	16.2
MELEZE JAPONAIS	25.0	21.0	19.7	7.3	5.8	21.1

#### 5.4.2 Classification selon l'énergie spécifique

Au fur et à mesure que l'on a fourni de l'énergie aux disques du raffineur ou que l'on a restreint l'écart entre eux, la surface des fibres s'est développée de plus en plus mais le développement de cette fibrillation a aussi été accompagné par une production de fines. Cette production a diminué la longueur moyenne des fibres et abaissé le taux de la fraction L14/28/48 (voir la figure 7).

Un autre facteur aurait pu affecter la longueur moyenne des fibres, celui de la température de raffinage. La lignine du bois possède une température de transition d'environ 130 °C. Par contre nous avons effectué le raffinage sous pression atmosphérique. La température à l'intérieur de la zone de raffinage ne pouvait donc pas excéder 100 °C. Ce qui implique que la séparation des fibres aurait dû se faire à l'intérieur de la paroi cellulaire et non pas à la lamelle mitoyenne. Ce qui aurait créé un bon taux de fines. Mais le haut degré de sulfonation d'une PCM ramollit tellement la lignine qu'il a permis la séparation des fibres à la lamelle mitoyenne et de conserver par le fait même une bonne fraction de fibres longues [37].

Comme en fonction du rendement, la distribution des fibres en fonction de l'énergie démontre que la mise en pâte chimicomécanique de l'épinette noire a tendance à donner une fraction importante de fibres longues comparativement aux



**FIGURE 7 : DISTRIBUTION DES FIBRES EN FONCTION DE L'ENERGIE**

mélèzes. Si l'on ne compare que les deux mélèzes, soulignons que les fibres les plus longues à l'origine, celles du mélèze japonais, deviennent les plus courtes après raffinage et à traitement égal produisent plus de fines. Cela peut venir de la grande quantité d'énergie donnée à ces fibres. Afin d'obtenir sensiblement la même classification de fibres pour chacune des trois essences, il ne faudrait guère appliquer une énergie de plus de 5 à 7 MJ/kg lors du raffinage mais à ces conditions les propriétés mécaniques en seraient désavantagées.

Nos pâtes chimicomécaniques de mélèze exotique ont eu une proportion plus élevée de fibres longues par rapport à une pâte mécanique de meule ou de raffineur [5], légèrement plus élevée qu'une pâte thermomécanique [5,28] mais plus faible qu'une pâte chimicothermomécanique [24], semi-chimique [37] ou chimique.

Il est normal que nous ayons retrouvé une fraction de fibres longues plus importante pour nos pâtes de mélèze si on les compare aux résultats obtenus par Leboeuf [5] sur des pâtes de mélèze PCTM car cet auteur a travaillé avec des mélèzes juvéniles dont les fibres sont plus courtes en moyenne.



### 5.5 Relations et analyses des diverses propriétés physiques

Parce qu'il est important de connaître les propriétés physiques des papiers fabriqués selon diverses essences de bois, une série de graphiques illustre et compare la grandeur de certaines caractéristiques en fonction du rendement en pâte obtenu ou de l'énergie spécifique de raffinage appliquée. Lorsque le graphique de chacune des résistances physiques fut tracé par rapport au rendement, les valeurs prises pour tracer ces courbes ont été déterminées à un indice d'égouttage de 300 ml, et lorsque le graphique fut tracé en fonction de l'énergie spécifique de raffinage, l'ensemble des points fut choisi pour un rendement de 85 %, ceci afin de faciliter et de préciser les comparaisons.

#### 5.5.1 La densité du papier

La densité de la feuille de papier est une mesure de la conformité de la fibre à l'intérieur de la structure ou une indication de sa capacité à créer des liens interfibres [22]. Cette mesure se veut être un bon indicateur de la qualité d'une pâte et elle est étroitement reliée à la consommation d'énergie lors de la production de cette même pâte. En comparaison avec l'épinette noire, la figure 8 nous fait voir, qu'à rendement égal le mélèze européen aussi bien que le mélèze japonais produisent des papiers avec un bouffant plus élevé, conséquence d'une surface spécifique inférieure des fibres d'où une capacité

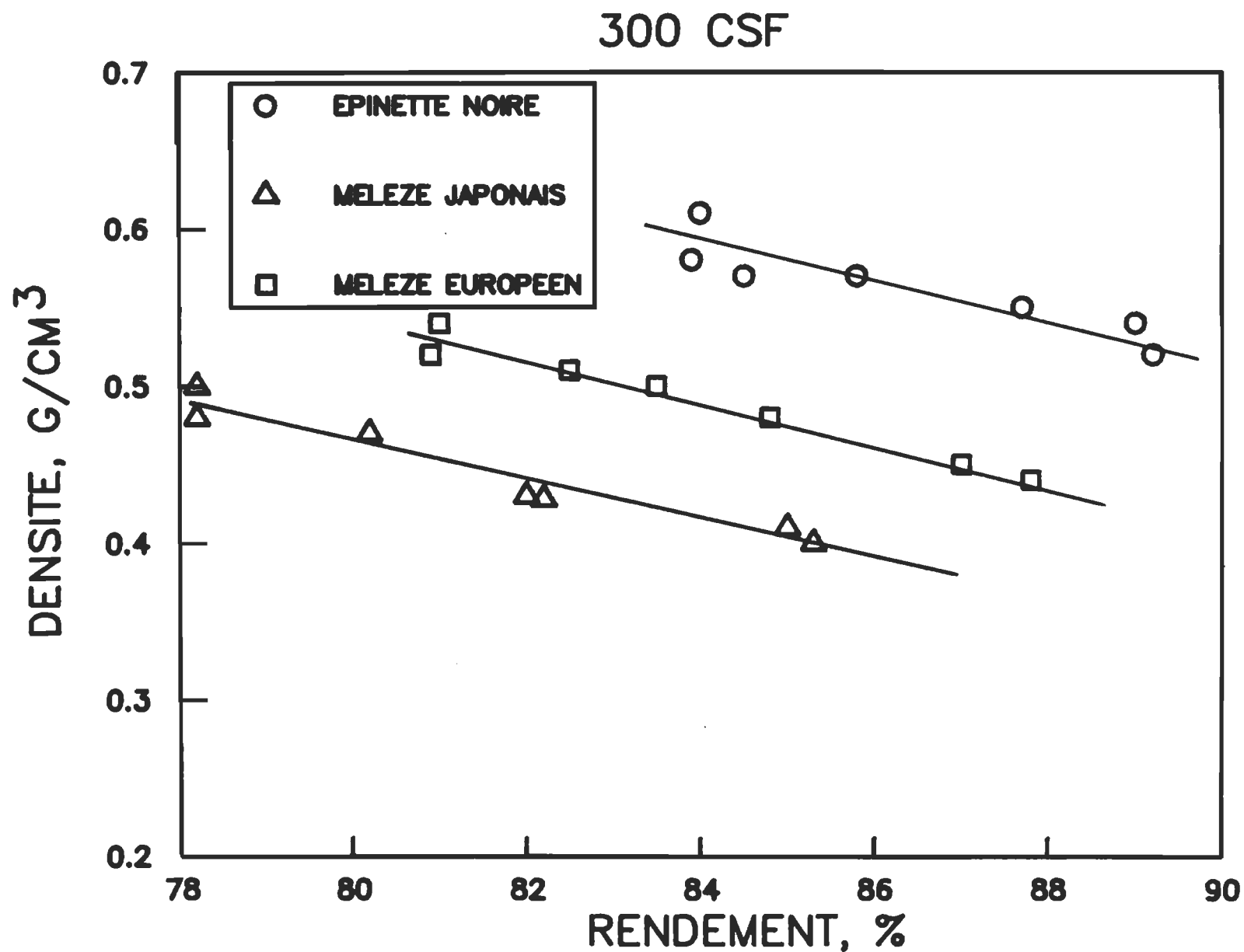


FIGURE 8 : DENSITE DU PAPIER EN FONCTION DU RENDEMENT

moindre à former des liens résistants. Variant entre 0,5 et 0,65 g/cm<sup>3</sup>, la densité du papier formé avec les fibres de l'épinette noire est de 48 % supérieure à celle du mélèze japonais pour une valeur constante de rendement. La densité de la feuille croît à mesure que l'on dissout de plus en plus les constituants du bois comme la lignine et les hémicelluloses durant la cuisson. L'augmentation de la densité, suivant une baisse de rendement, est le résultat de la flexibilité et de l'effondrement améliorés des longues fibres qui réduisent les vides dans la structure de la feuille [48]. En milieu alcalin on favorise cette flexibilité des fibres et de ce fait la densité du papier [47]. A l'influence du rendement en pâte sur la densité du papier, s'ajoutent les caractéristiques morphologiques des espèces de bois utilisées. Nous savons que les mélèzes possèdent une matrice de fibres plus rigides à cause de leurs épaisses parois cellulaires qui contribuent à la réduction de la densité finale du papier produit. En d'autres mots, pour un certain rendement en pâte, les caractéristiques papetières dépendent grandement de la nature des fibres qui forment la structure du papier. Le mélèze japonais ayant une densité légèrement supérieure et une fibre un peu plus rigide produit un papier avec une densité moindre que l'espèce européenne.

La densité croît également avec une augmentation de l'énergie spécifique (voir figure 9). D'après cette figure, nous pouvons remarquer que la feuille de mélèze japonais possède la plus faible densité pour un taux d'énergie donné. Autrement dit,

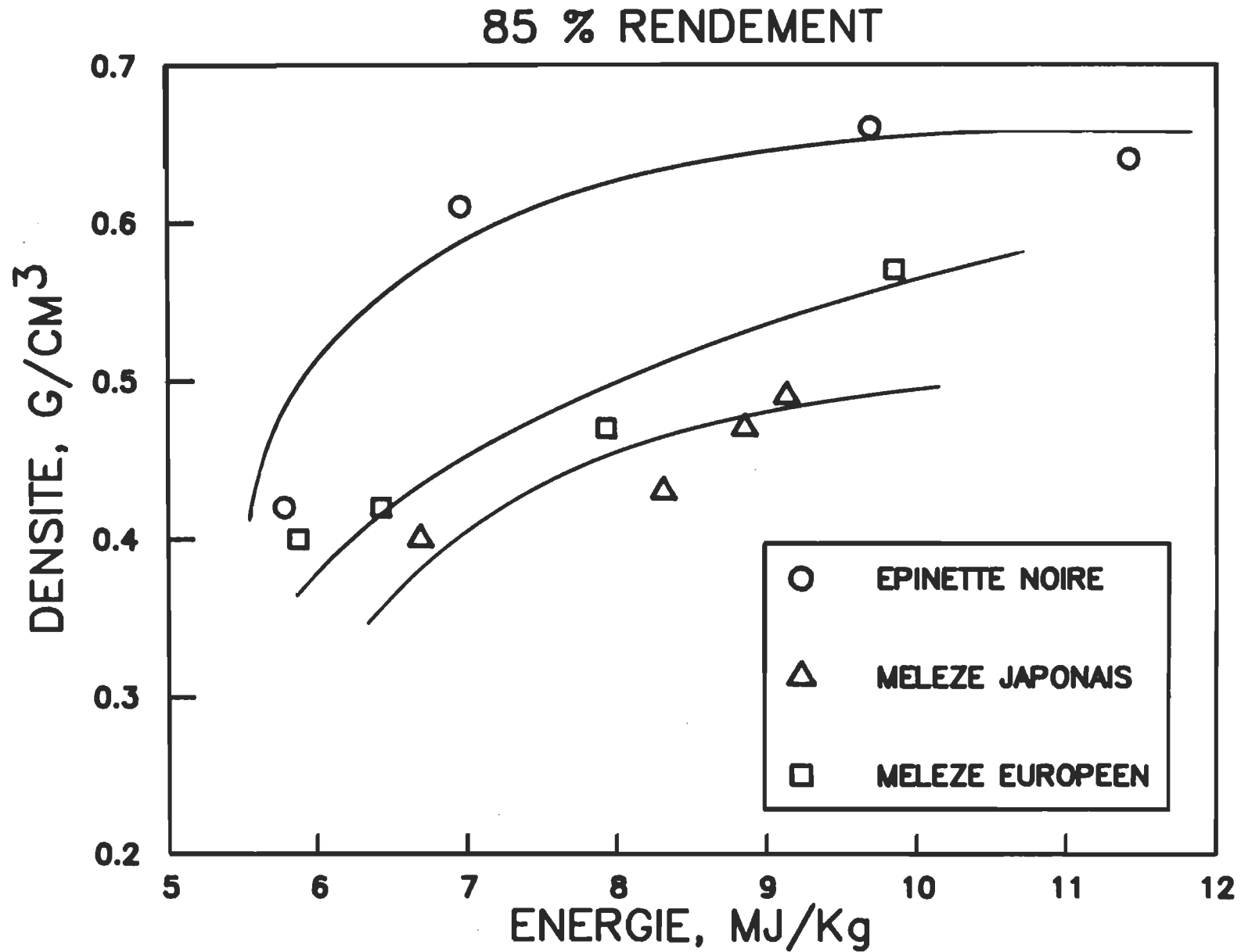


FIGURE 9 : DENSITE DU PAPIER EN FONCTION DE L'ENERGIE SPECIFIQUE

les pâtes d'épinette et de mélèze d'Europe consomment moins d'énergie pour une valeur de densité choisie. Lorsque nous intensifions l'énergie appliquée sur les fibres, celles-ci se fibrillent et parfois se coupent, ce qui élève le taux de fines. Ces fibres coupées et les fibrilles rattachées aux fibres non brisées comblent les vides du papier et le rendent moins bouffant, plus dense.

D'autre part, des études [33,35,39] révèlent que la densité du papier est davantage influencée par une variation de la température de cuisson plutôt que d'une variation du temps de cuisson. Ayant constamment maintenu notre température à 170 °C, l'influence de cette variable demeure nulle et n'affecte en rien notre analyse.

La sulfonation des copeaux suivie du raffinage produit normalement des pâtes chimicomécaniques avec une densité plus élevée que les pâtes mécaniques de raffineur [48]. En se référant à d'autres auteurs, les densités de nos PCM d'épinette se confirment [34,37] et nos PCM de mélèze, encore bien en dessous des pâtes Kraft [42], démontrent une densité plus forte que les pâtes fabriquées à partir des procédés PMR et PTM [22] pour un indice d'égouttage constant car les longues fibres sont devenues plus souples et cohésives avec le prétraitement chimique. De plus la sulfonation douce des copeaux de mélèze suivie d'un raffinage sous pression de vapeur, procédé PCTM, produit des feuilles de densité inférieure à nos PCM car leurs fibres longues et rigides

restent faiblement affaissées [24,50]. Avec une consommation d'énergie variant entre 6 et 11 MJ/kg, si nous transposons nos mesures avec celles de la littérature, les papiers de nos PCM de mélèze sont plus denses (20 %) que les PCM de tremble et moins denses (50 %) que les PCM de bouleau blanc [36]. La morphologie des fibres y joue un rôle de premier ordre.

#### 5.5.2 Résistances physiques en fonction du rendement

La figure 10 illustre une résistance à la rupture pour les deux mélèzes qui décroît de 7,5 à 4,5 km lorsque le rendement en pâte passe de 78 à 87 %. Le rendement pour la pâte d'épinette étant plus haut, la valeur minimale ne descend qu'à 6,5 km pour un rendement de près de 90 %. Cette réduction de 40 % à la rupture qu'accusent ainsi les pâtes de mélèze fut causée par une augmentation considérable de la rigidité des fibres, conséquence d'un rendement plus élevé de 11 %. Cela signifie que chaque 1 % d'augmentation en rendement pour les PCM de mélèze a entraîné une réduction correspondante de 4 % de leur résistance à la traction. Au rendement maximum, une telle diminution est attribuée à une capacité détériorée des liaisons entre les fibres étant donné qu'elles deviennent beaucoup moins lâches lorsque le degré de délignification est faible [36].

Un écart de résistance à la rupture survient également entre les espèces de bois. Sous les mêmes conditions, le mélèze du Japon possède une longueur de rupture de 4,8 km à 84 % de

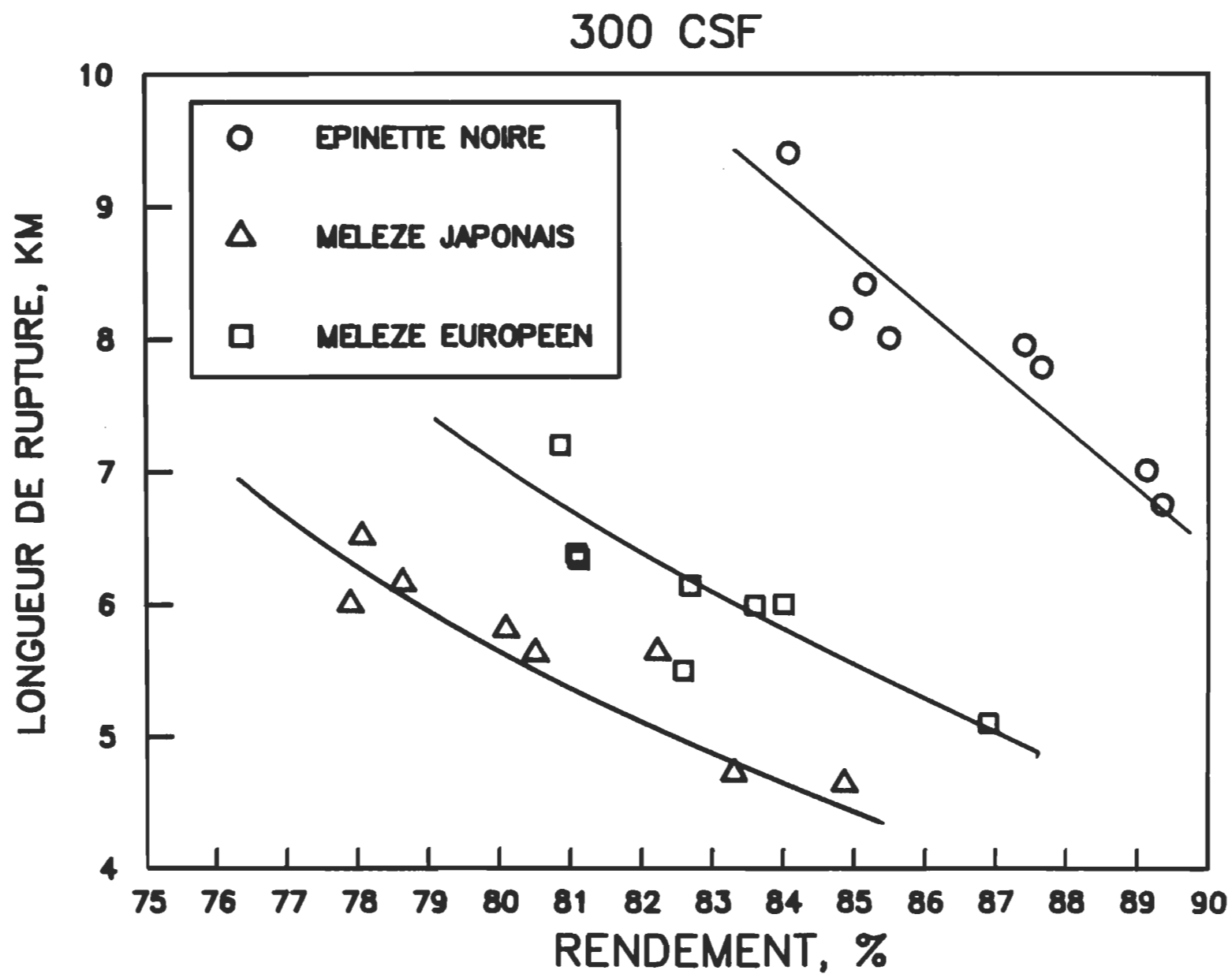


FIGURE 10 : LONGUEUR DE RUPTURE EN FONCTION DU RENDEMENT

rendement, soit une infériorité de 20 % vis-à-vis l'espèce d'Europe (6,0 km) et 47 % vis-à-vis l'épinette noire (8,9 km). Une étude souligne qu'avec des conditions d'opération un peu moins alcalines, pH de 8, l'indice de rupture d'une pâte chimicomécanique de tremble ou de bouleau, 5-7 km, équivaut ou surpasse légèrement l'indice de nos PCM de mélèze [36]. Par contre, à pH 12, une PCM de mélèze laricin a à peu près la même résistance à la rupture [44]. Néanmoins l'écart des forces ne peut être attribuable qu'à la nature du bois. L'épaisseur des parois et la longueur d'une fibre en déterminent la rigidité et par conséquent la qualité du papier. L'épaisseur considérable des parois cellulaires des deux mélèzes exotiques par rapport à l'épinette noire les désavantage donc au niveau de la rupture.

Parallèlement à l'indice de rupture, l'indice d'éclatement réagit de la même façon lors d'une variation du rendement (voir figure 11). Les indices les plus faibles caractérisent ici encore les mélèzes d'Europe et du Japon. L'épinette noire surclasse ces derniers avec des résistances à l'éclatement compris entre 4 et 7 kPa·m<sup>2</sup>/g dépendamment du rendement obtenu. Par exemple à 85 % de rendement en pâte, les papiers d'épinette ont résisté jusqu'à 6,0 kPa·m<sup>2</sup>/g en moyenne tandis que ceux du mélèze européen ont atteint 4,2, 30 % en moins, et ceux de l'espèce japonaise 2,7 kPa·m<sup>2</sup>/g, 50 % en moins.

Contrairement à la rupture et à l'éclatement, la rigidité des fibres des mélèzes a permis aux pâtes d'être beaucoup plus



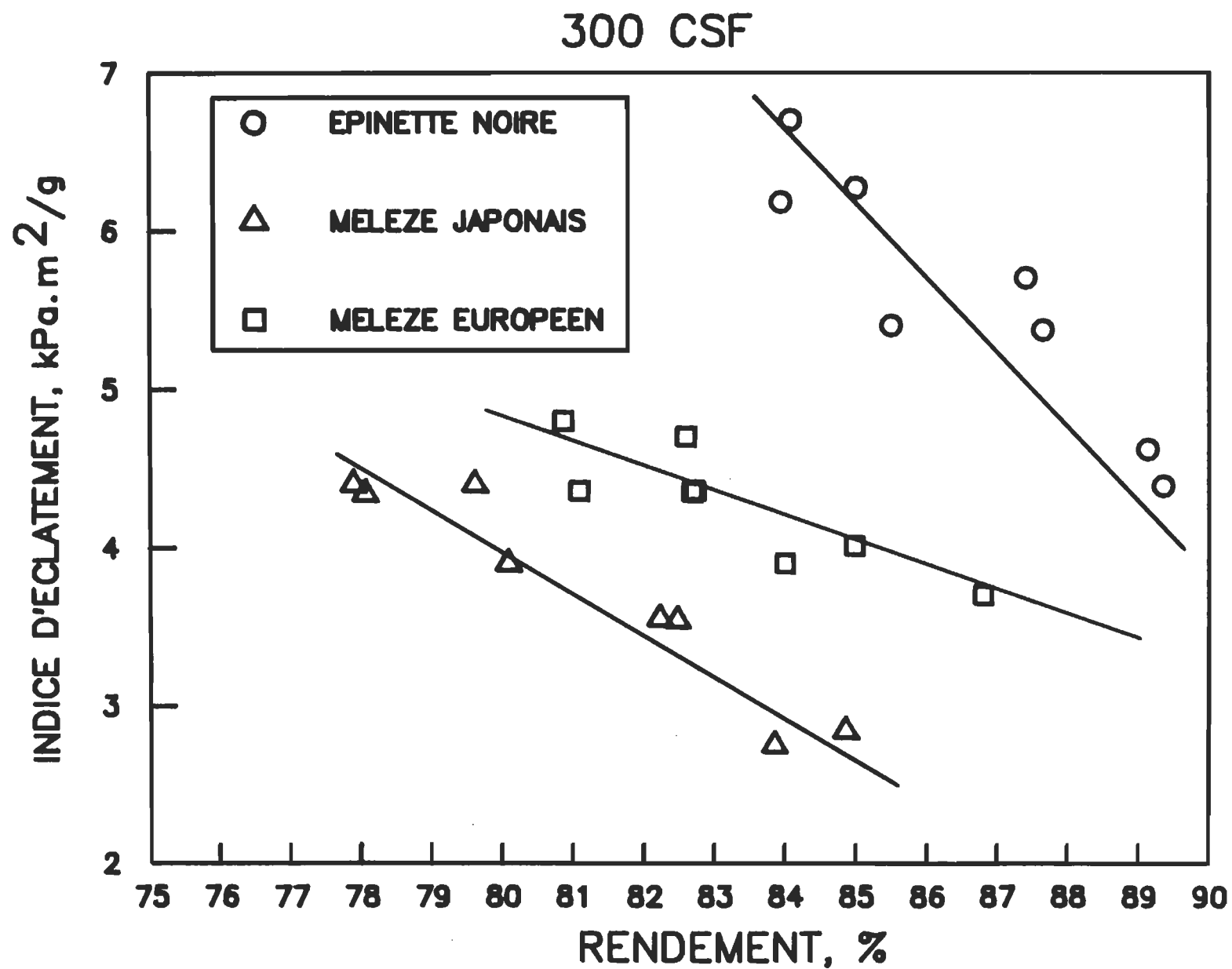


FIGURE 11 : INDICE D'ECLATEMENT EN FONCTION DU RENDEMENT

résistantes à la déchirure que l'épinette noire (voir figure 12). Comme l'illustre la figure 13, le mélèze japonais, avec une fibre plus rigide découlant de la densité supérieure de son bois, fut celui qui a nécessité le moins de fibres longues pour résister à une certaine contrainte de déchirure. Un papier qui aura une faible densité résistera donc mieux à la déchirure. Les mélèzes ont pu atteindre des données maximales de résistance très respectables qui ont plafonné aux environs de  $11,0 \text{ mN}\cdot\text{m}^2/\text{g}$  comparativement à  $7,0$  pour l'épinette avec un indice d'égouttage fixé à  $300 \text{ ml}$ , soit une supériorité de près de  $60 \%$ . La résistance à la déchirure pour les mélèzes croît, d'après cette même figure, de  $7-8 \text{ mN}\cdot\text{m}^2/\text{g}$  pour un rendement de  $78 \%$  jusqu'à un indice maximum de  $10-11 \text{ mN}\cdot\text{m}^2/\text{g}$  pour un rendement de  $87 \%$ . Cette augmentation de  $38 \%$  signifie que chaque  $1 \%$  d'augmentation a produit une élévation correspondante de  $4 \%$  de leur résistance à la déchirure. Ainsi la déchirure a démontré la même sensibilité que la rupture pour une variation du rendement.

Vers  $84 \%$  de rendement, le mélèze japonais ne pouvant plus améliorer sa résistance à la déchirure a croisé la courbe représentative du mélèze européen qui elle, progressant linéairement, semblait vouloir atteindre  $12 \text{ mN}\cdot\text{m}^2/\text{g}$  à une valeur possible de rendement plus élevé.

En se basant sur la littérature [35,36], nos feuilles-test de mélèze européen ou japonais ont enregistré de bons indices de rupture contrairement aux pâtes de bois feuillus comme le bouleau

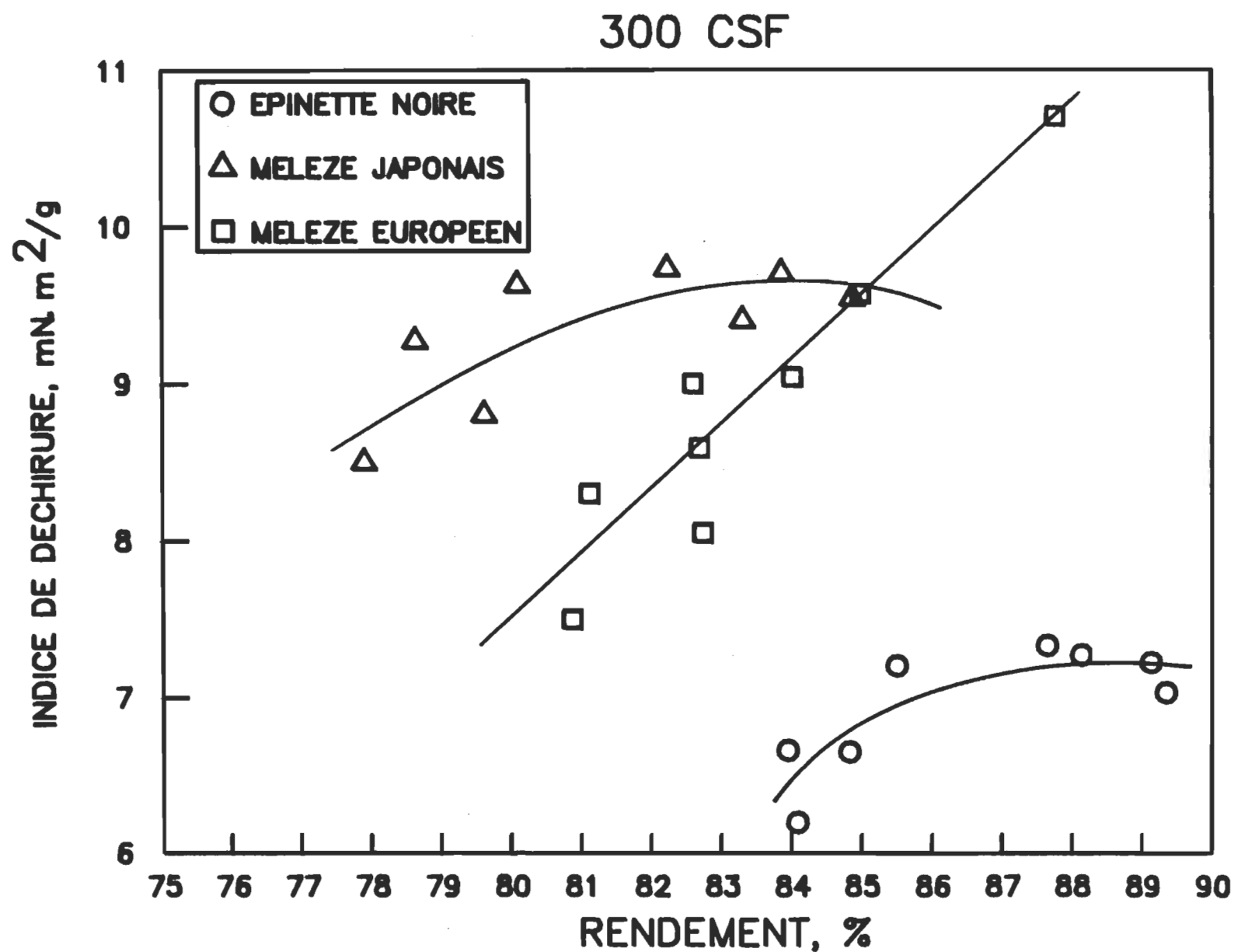


FIGURE 12 : INDICE DE DECHIRURE EN FONCTION DU RENDEMENT

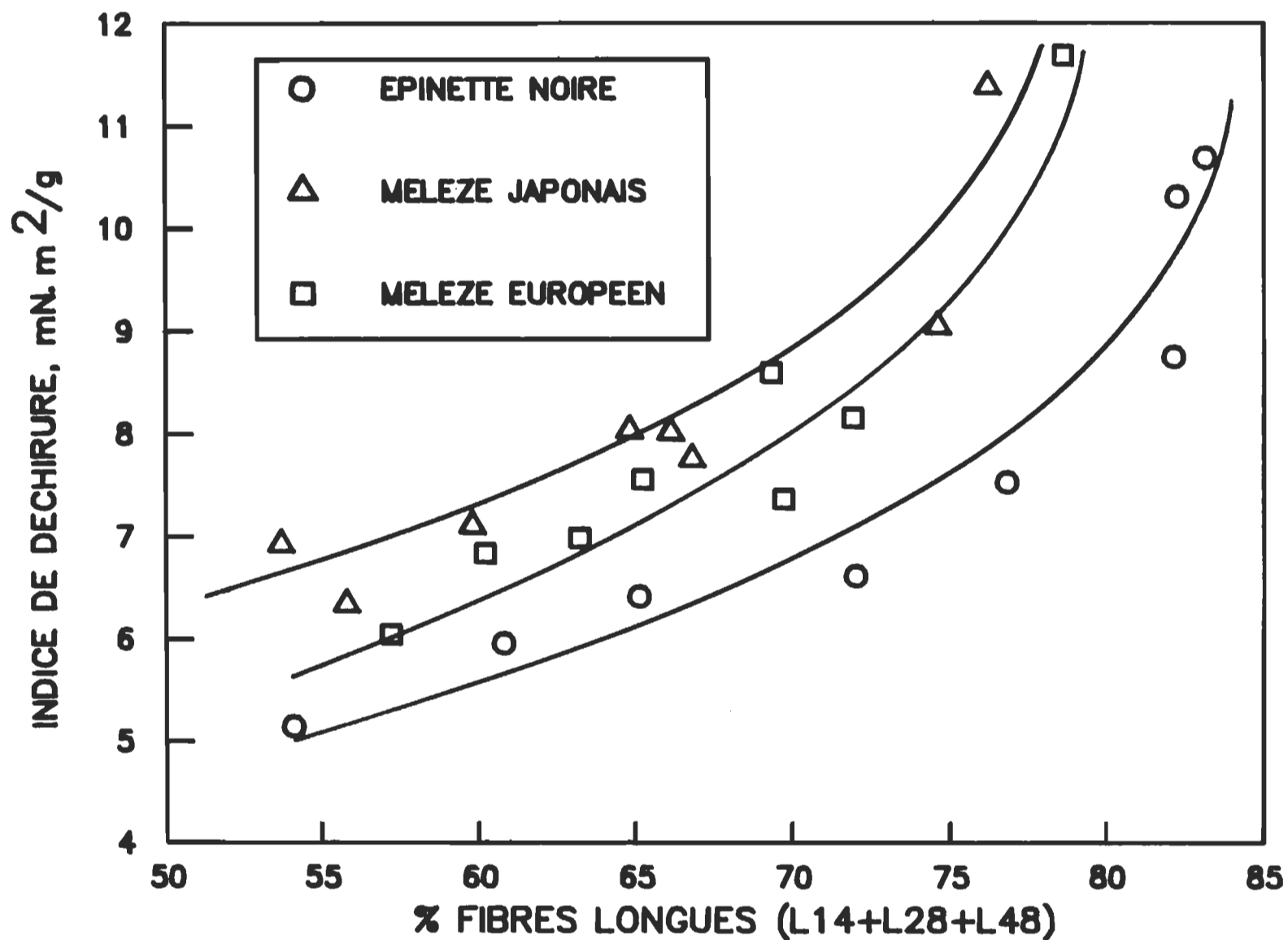


FIGURE 13 : INDICE DE DECHIRURE EN FONCTION DU % DE FIBRES LONGUES

et le tremble mais n'ont démontré aucun écart marquant vis-à-vis des pâtes chimicomécaniques de mélèze laricin [36,44].

Ayant exécuté nos cuissons avec une température aussi haute que 170 °C et un pH alcalin de 12, nous avons intensifié la sulfonation des copeaux et davantage lorsque nous augmentons le temps de cuisson de 20 à 80 min.. Généralement la qualité d'une pâte augmente significativement avec l'augmentation du degré de sulfonation et d'hydrolyse. Une pâte dont le temps de résidence des copeaux à l'intérieur du lessiveur est de 80 min. au lieu de 20 min. possède un nombre supérieur de fibres longues et souples puis la consolidation de la feuille s'en ressent positivement [49]. C'est-à-dire qu'une augmentation de la sulfonation et de l'hydrolyse, reliée à une perte de rendement, engendre une cohésion ou une liaison améliorée des fibres. Un papier beaucoup plus résistant en résulte. Les indices de rupture, d'éclatement et de déchirure semblent donc montrer un gain important à l'aide d'un prétraitement alcalin [34,36,44] et d'une température très élevée [34,35]. Le choix d'une phase chimique alcaline, et non acide, durant la fabrication de nos PCM a ainsi amélioré grandement les forces intrinsèques et les propriétés mécaniques du papier [5,24,36].

### 5.5.3 Résistances physiques en fonction de l'énergie spécifique

#### 5.5.3.1 Consommation d'énergie

Dans la fabrication du papier, il importe de porter une attention particulière quant à une réduction souhaitable de la consommation d'énergie aux opérations de raffinage. Cela peut être réalisé par un traitement des copeaux à la vapeur, par une compression ou par un prétraitement chimique de ces derniers. Cependant, l'espèce de bois utilisée peut aussi jouer un rôle de première importance dans la détermination du degré d'énergie requise lors du processus de raffinage. Comme l'indique la figure 14, les deux espèces de mélèze ont nécessité une énergie spécifique considérablement plus grande que l'épinette pour un indice d'égouttage donné en dépit du fait que le rendement de chacune des essences soit presque identique.

A cause d'une épaisseur cellulaire plus élevée, les mélèzes ont en fait eu besoin d'une consommation supérieure d'énergie par rapport à l'épinette noire [27]. Contraints par ce désavantage, les mélèzes ont requis jusqu'à 25 % plus d'énergie de raffinage pour atteindre un indice d'égouttage donné. Ceci est particulièrement vrai pour des CSF en dessous de 400 ml. Ainsi l'influence des paramètres physiques du bois doit être prise en considération lorsqu'une analyse économique est envisagée.

Il est donc probable qu'en ayant prolongé la durée de

85 % RENDEMENT

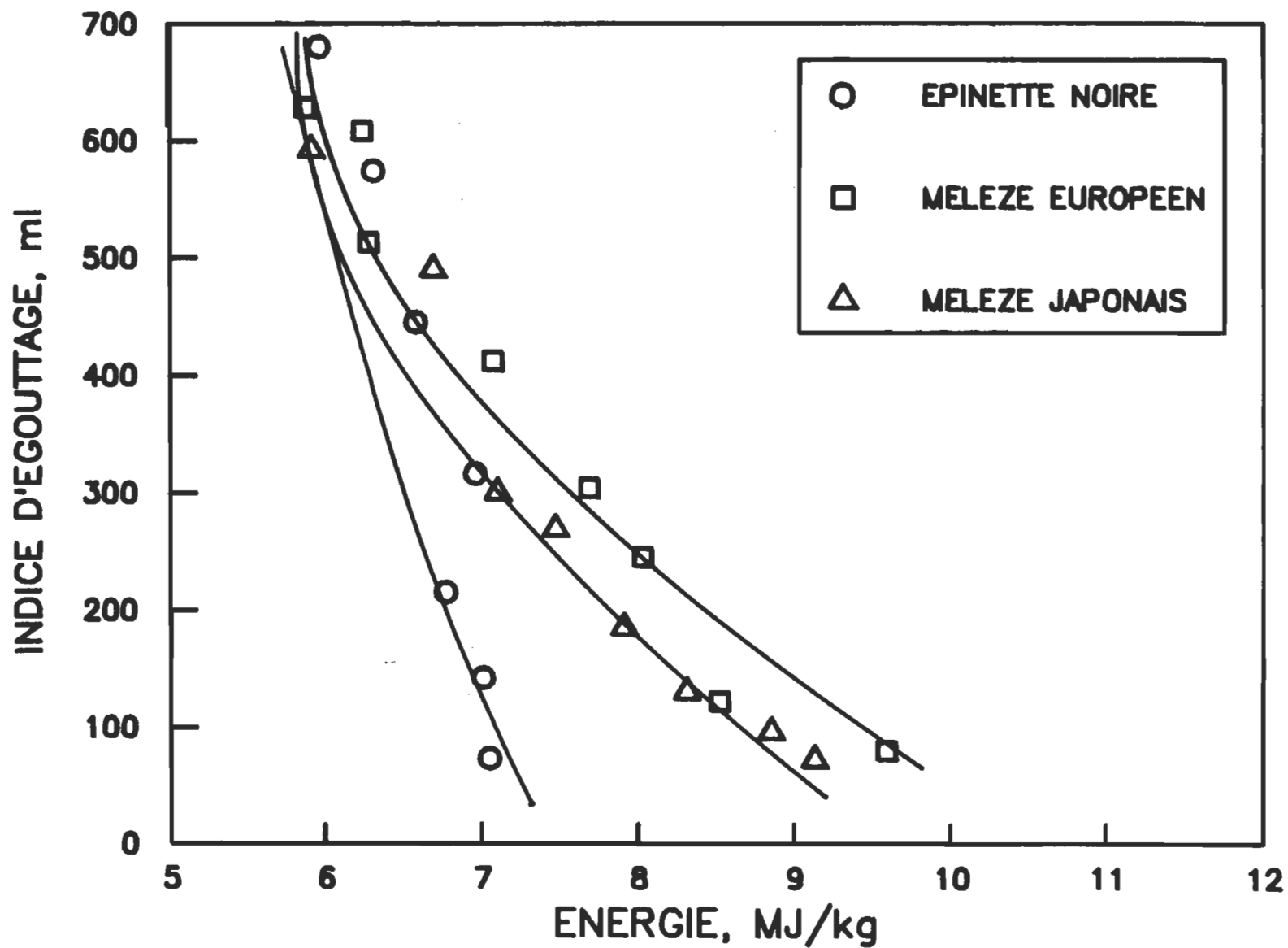


FIGURE 14 : INDICE D'EGOUTTAGE EN FONCTION DE L'ENERGIE SPECIFIQUE

cuisson afin de réduire le rendement vers une valeur de 80 %, la demande énergétique pour l'obtention d'un indice d'égouttage choisi aurait été réduite. Par contre, si l'on compare nos PCM de mélèze avec des pâtes mécaniques de raffineur, nos pâtes sulfonées qui ont subi le prétraitement chimique au sulfite demanderaient plus d'énergie pour une valeur de CSF constante que les pâtes non sulfonées, et davantage si le pH est alcalin car les fibres sont devenues beaucoup plus flexibles et protégées des cassures [24,29,34]. Mais elles demanderaient beaucoup moins d'énergie qu'une PTM ou PCTM [29].

Des travaux réalisés avec le mélèze laricin et l'épinette noire confirment l'exactitude de nos résultats [24,34]. Soit une demande de 6 à 7,5 MJ/kg de pâte pour l'épinette et de 6,5 à 9,0-9,5 MJ/kg de pâte pour les mélèzes du Japon et d'Europe afin de réduire l'indice d'égouttage de 600 à 100 ml. Il est incompréhensible de constater que la pâte du mélèze européen ait consommé légèrement plus d'énergie que l'espèce japonaise car la densité de son bois, comme nous l'avons cité à maintes reprises, est légèrement plus faible donc plus facilement raffirable sous pression atmosphérique. Peut-être est-ce dû à une réaction chimique quelconque au niveau du lessiveur qu'on ne pourrait constater et expliquer? De toute façon, les deux courbes sur le graphique sont si rapprochées qu'une superposition de l'une sur l'autre ne change en rien l'analyse. Nous verrons ultérieurement que la pâte de mélèze européen résiste mieux à la rupture et à l'éclatement que l'autre mélèze pour un indice d'égouttage donné,



c'est pourquoi une demande d'énergie plus faible aurait dû normalement apparaître sur le graphique.

#### 5.5.3.2 Résistance à la rupture

Il est intéressant de noter d'après la figure 15 que, pour une consommation d'énergie constante, la pâte chimicomécanique de mélèze japonais s'est méritée la pire longueur de rupture. C'est parce qu'elle a aussi fourni les feuilles de plus faible densité (voir figures 8 & 9) entraînant de mauvais liens interfibres. Dans le cas du mélèze d'Europe, les pâtes ont consommé relativement moins d'énergie de raffinage pour résister à une contrainte de rupture spécifique. De 1 à 2 MJ/kg en moins pour atteindre un indice de rupture de 6 km. L'épinette noire a fourni le meilleur indice de traction, 50 % de mieux, avec une valeur maximale de 9,0 km contre 5,5-6,0 km pour chacun des mélèzes, ce qui reste toutefois très acceptable. Les données de l'allongement étaient aux alentours de 3,3 et 2,6 % respectivement. Seule la courbe caractérisant la pâte du mélèze japonais n'avait pas encore accédé à un plateau de résultats maximaux. Cette pâte aurait donc pu subir un traitement plus intense par les disques du raffineur pour améliorer quelque peu son indice de rupture.

La résistance à la rupture des PCM de bouleau, de tremble ou d'un résineux comme le pin gris (5,5-6,8 km), est sensiblement la même que celle obtenue par nos mélèzes exotiques [32,36,37].

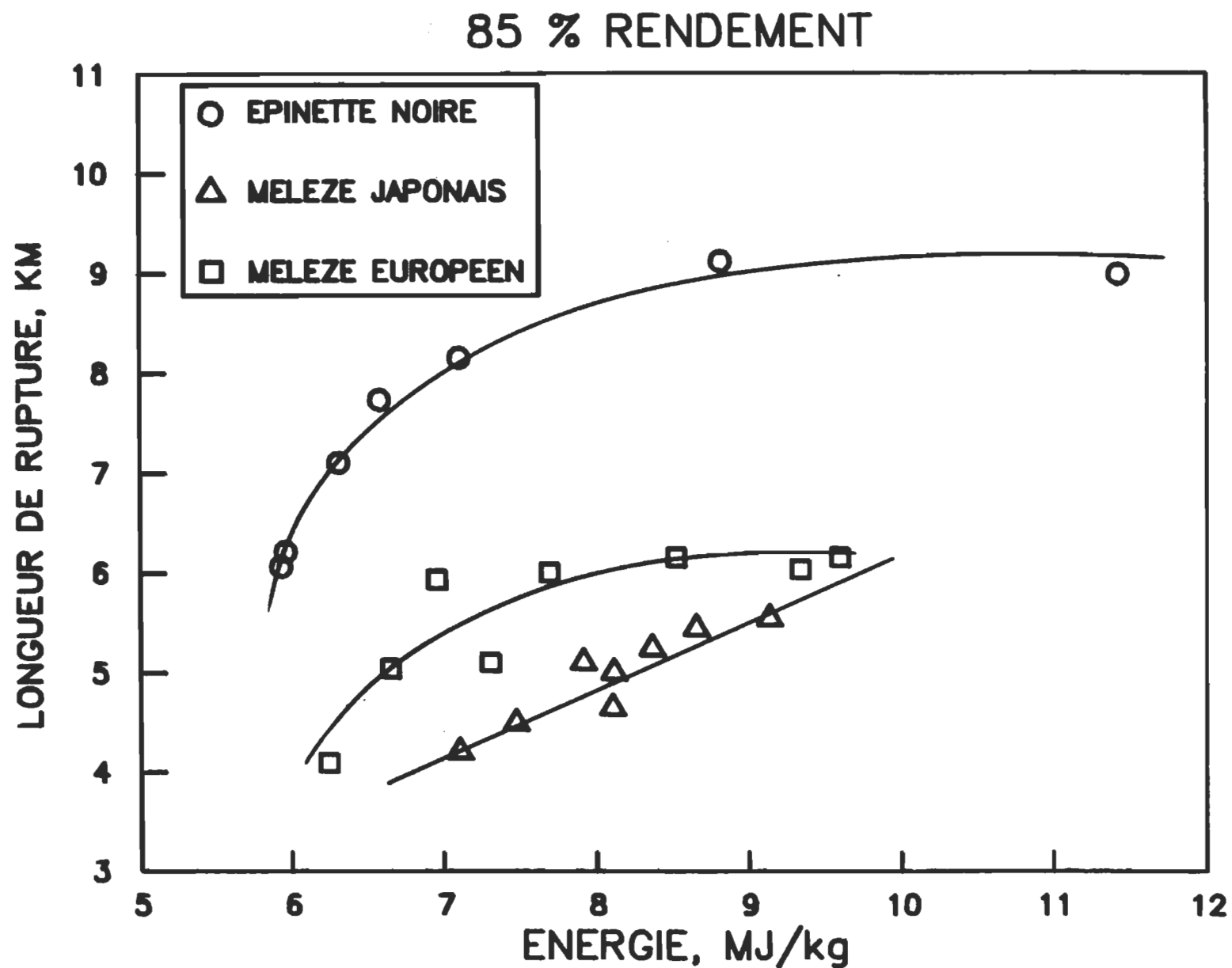


FIGURE 15 : LONGUEUR DE RUPTURE EN FONCTION DE L'ENERGIE SPECIFIQUE

L'érable par contre possède un indice largement plus faible car ces copeaux de bois franc demeurent plus difficiles à sulfoner [37]. Les caractéristiques morphologiques des fibres influencent la densité de la feuille et de ce fait la consommation d'énergie et les forces physiques. Sur la figure 15, on peut aussi constater une demande d'énergie d'environ 50 % supérieure pour le mélèze européen et 65 % pour le mélèze du Japon par rapport à l'épinette pour un indice de rupture constant. Au moment de l'application d'une telle énergie pour développer la surface des parois des fibres, la fraction L200/P200 prend également de l'ampleur, plus de 20 % (voir figure 7). Cette fraction de fines favorise la densité du papier et par conséquent sa longueur de rupture.

La figure 16 rapporte une relation très étroite entre la longueur de rupture et la densité. Notons que les pâtes de mélèze se sont comportées différemment de celles de l'épinette noire. La forme courbée des relations densité-rupture de chacune des essences de mélèze fait contraste à la forme rectiligne, ou à la corrélation linéaire des résultats représentatifs de l'épinette. En fait, la longueur de rupture des pâtes de mélèze tend à se stabiliser pour des valeurs de densité au-delà de  $0,55 \text{ g/cm}^3$ , ce qui implique qu'une suraugmentation de la densité du réseau fibreux ne leur assurerait aucune amélioration des forces de liaisons.

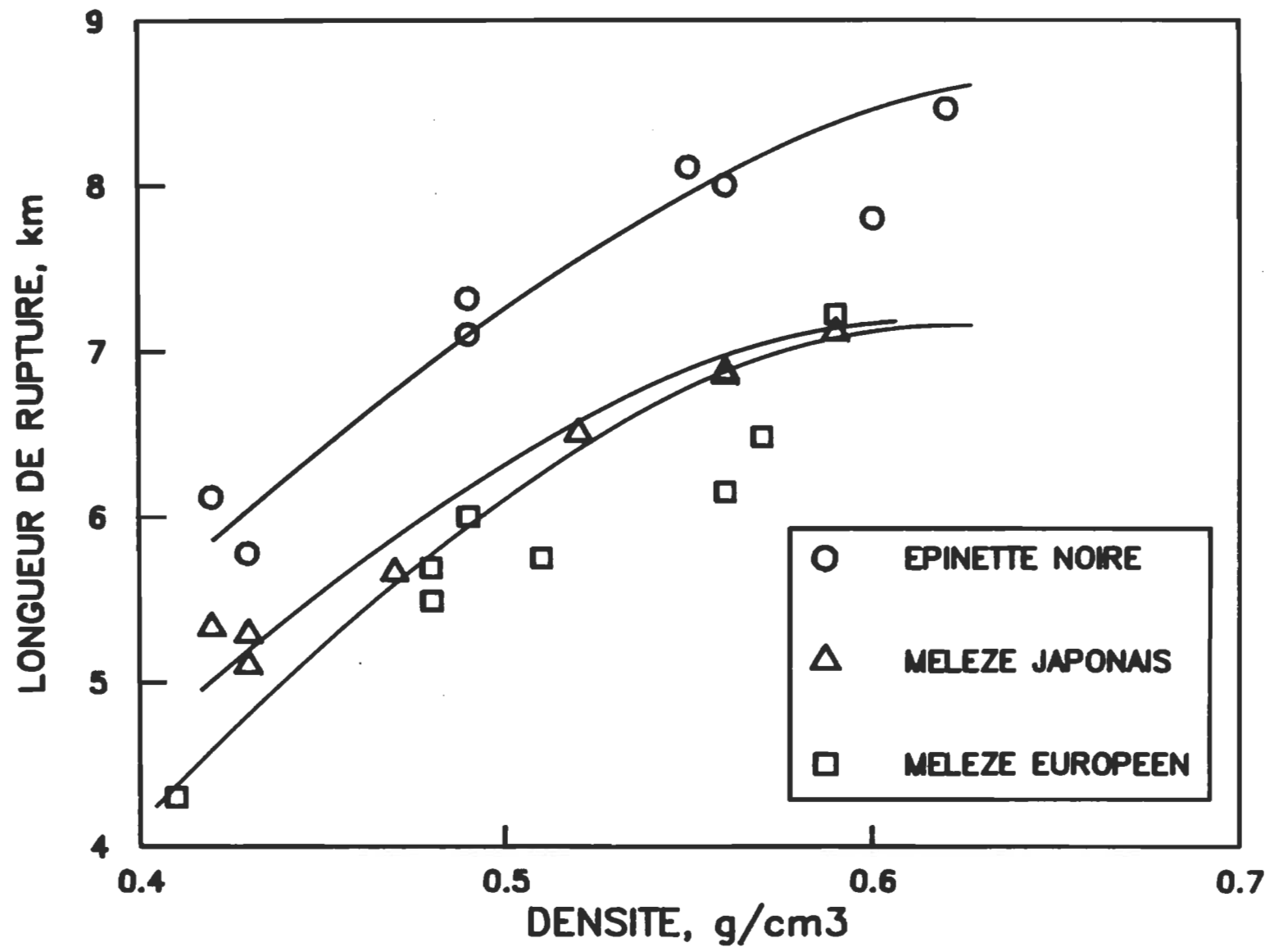


FIGURE 16 : LONGUEUR DE RUPTURE EN FONCTION DE LA DENSITE

D'après les faibles résultats [5,22,24] des PMR et PTM de mélèze, 3,0-3,5 km, le prétraitement chimique des copeaux a grandement contribué à l'effondrement des fibres et des contacts fibres à fibres, renforçant du même coup la résistance à la traction. La longueur de rupture d'un papier fait de PMR ou PTM dépend de la qualité et du taux de fibres moyennes et courtes. Toute diminution significative de la fraction L100 ou L200 lors du raffinage d'une pâte mécanique peut occasionner une décroissance sensible de la résistance à la traction [48]. D'autre part, nous pouvons observer que la longueur de rupture maximale d'une pâte chimicomécanique ayant 65 % et plus de fibres longues (voir figures 6 et 7) bien sulfonées est deux fois plus grande que celles des pâtes mécaniques. Une bonne sulfonation alcaline produit un gonflement irréversible et une flexibilité accrue des parois cellulaires provoquant un effondrement de la structure de la fibre, une surface spécifique augmentée, et de bonnes zones propices aux liens [48]. En d'autres mots, la sulfonation alcaline des copeaux résulte en une réduction importante de l'énergie spécifique de raffinage pour un indice de rupture donné [47]. Certains auteurs [24] affirment qu'il faut jusqu'à 9 % de sulfite de sodium et 4 % d'hydroxyde de sodium dans la composition de la liqueur de cuisson pour percevoir une amélioration importante des propriétés physiques. Malgré que notre prétraitement fut effectué avec 5 % de sulfite seulement, nous remarquons tout de même des propriétés comparables à d'autres et très acceptables. Nous pouvons aussi noter que pour une consommation d'énergie constante, la pâte

chimicomécanique est généralement plus résistante à la rupture que la pâte chimicothermomécanique par suite de sa meilleure aptitude à former des liens interfibres [24].

#### 5.5.3.3 Résistance à l'éclatement

La résistance à l'éclatement, selon l'énergie spécifique, s'est comportée exactement comme la résistance à la rupture (voir figure 17). Pour un niveau d'énergie spécifique donné, l'indice d'éclatement fut en faveur de l'épinette noire suivi par celui du mélèze européen et celui du mélèze du Japon. Une différence supérieure de plus de 125 % et de 33 % sépare l'épinette et le mélèze d'Europe du mélèze japonais à des niveaux d'énergie mesurés entre 6,5 et 9,0 MJ/kg. Au dessus de 8,0 MJ/kg, la pâte de mélèze européen commence à subir une détérioration de sa résistance à l'éclatement, cause probable d'un taux trop élevé de fibres coupées. Les mélèzes exotiques ont démontré des indices d'éclatement moyens qui s'étalent entre 2,5 et 4.0 kPa·m<sup>2</sup>/g comparativement à 5,0-6,8 kPa·m<sup>2</sup>/g par rapport à l'épinette pour des consommation d'énergie variant entre 6 et 11 MJ/kg. Même à des niveaux d'énergie spécifique plus élevés, les pâtes de mélèze n'auraient pu atteindre la résistance à l'éclatement de l'épinette étant donné la nature de leurs fibres.

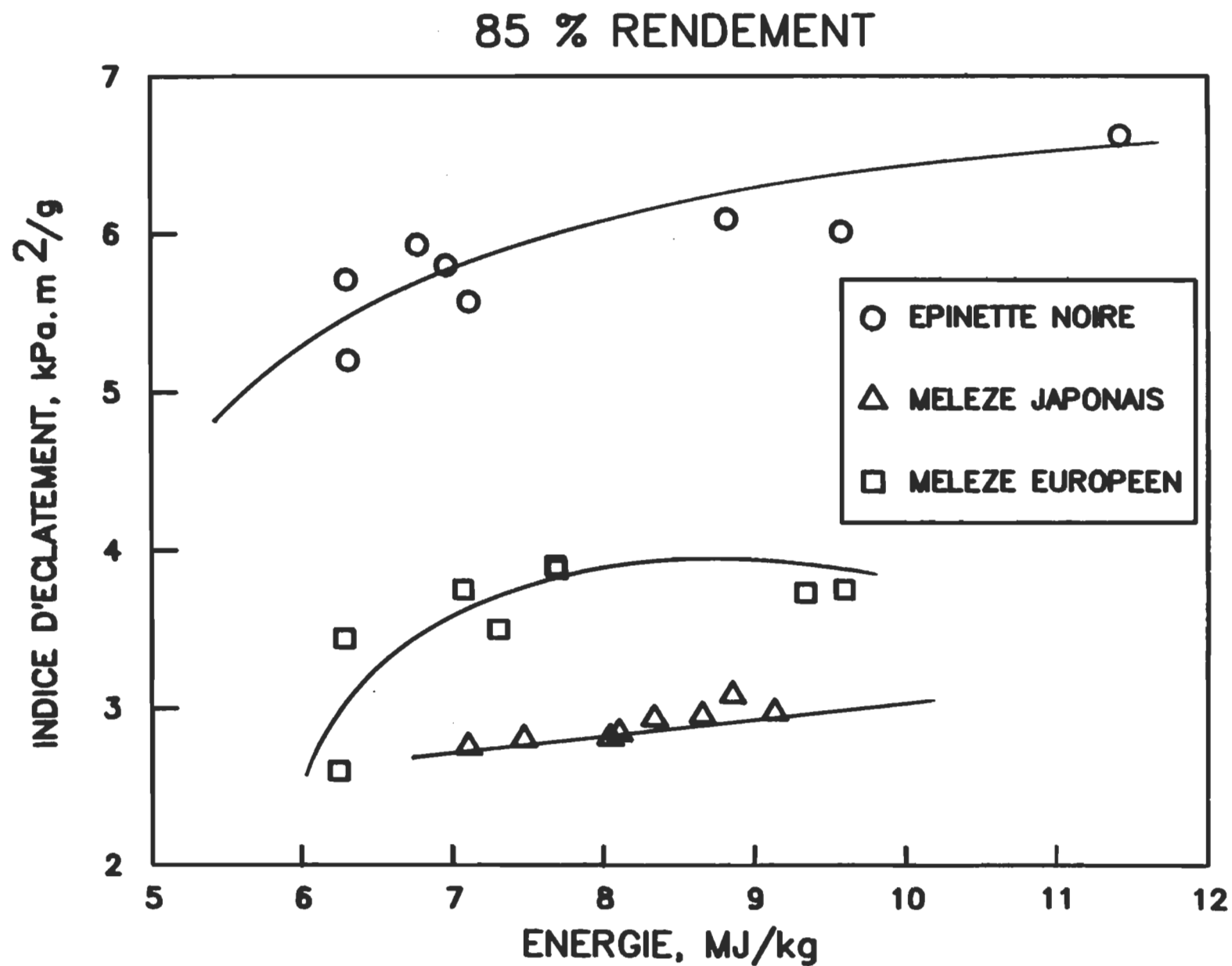


FIGURE 17 : INDICE D'ECLATEMENT EN FONCTION DE L'ENERGIE SPECIFIQUE

#### 5.5.3.4 Résistance à la déchirure

Contrairement à la longueur de rupture, en se référant à la figure 18, l'indice de déchirure a chuté lorsque nous augmentions l'énergie spécifique. L'augmentation du travail sur les fibres les a davantage raccourcies et leur longueur moyenne fut abaissée. Une augmentation de la densité du papier désavantage donc la résistance à la déchirure. Le fait de couper les fibres diminue graduellement le nombre de fibres à être arrachées durant la déchirure de la feuille, diminuant ainsi l'indice de déchirure. Parce que l'indice de déchirure est une mesure de l'énergie requise pour arracher les fibres dans la zone de rupture [50], la feuille de faible densité possède des fibres longues et individuelles qui sont plus susceptibles de combattre la contrainte et ensuite d'être arrachées de la structure dû au manque de liaisons interfibres [50]. La résistance à la déchirure maximale correspond à une consommation minimale d'énergie de raffinage. Ce phénomène fut observé sur toutes les pâtes étudiées.

Pour une PCM, le ramollissement des copeaux à l'aide du traitement chimique a facilité la séparation des fibres lors du raffinage, ce qui a augmenté le nombre de fibres longues. Par conséquent, le traitement a accru la résistance à la déchirure [24] comparativement aux pâtes thermomécaniques et mécaniques de raffineur (7,5-8,5 mN·m<sup>2</sup>/g) fabriquées à partir de mélèzes exotiques ou laricins [5,22,24]. De plus la rigidité supérieure des fibres des mélèzes leur a procuré un avantage certain vis-à-



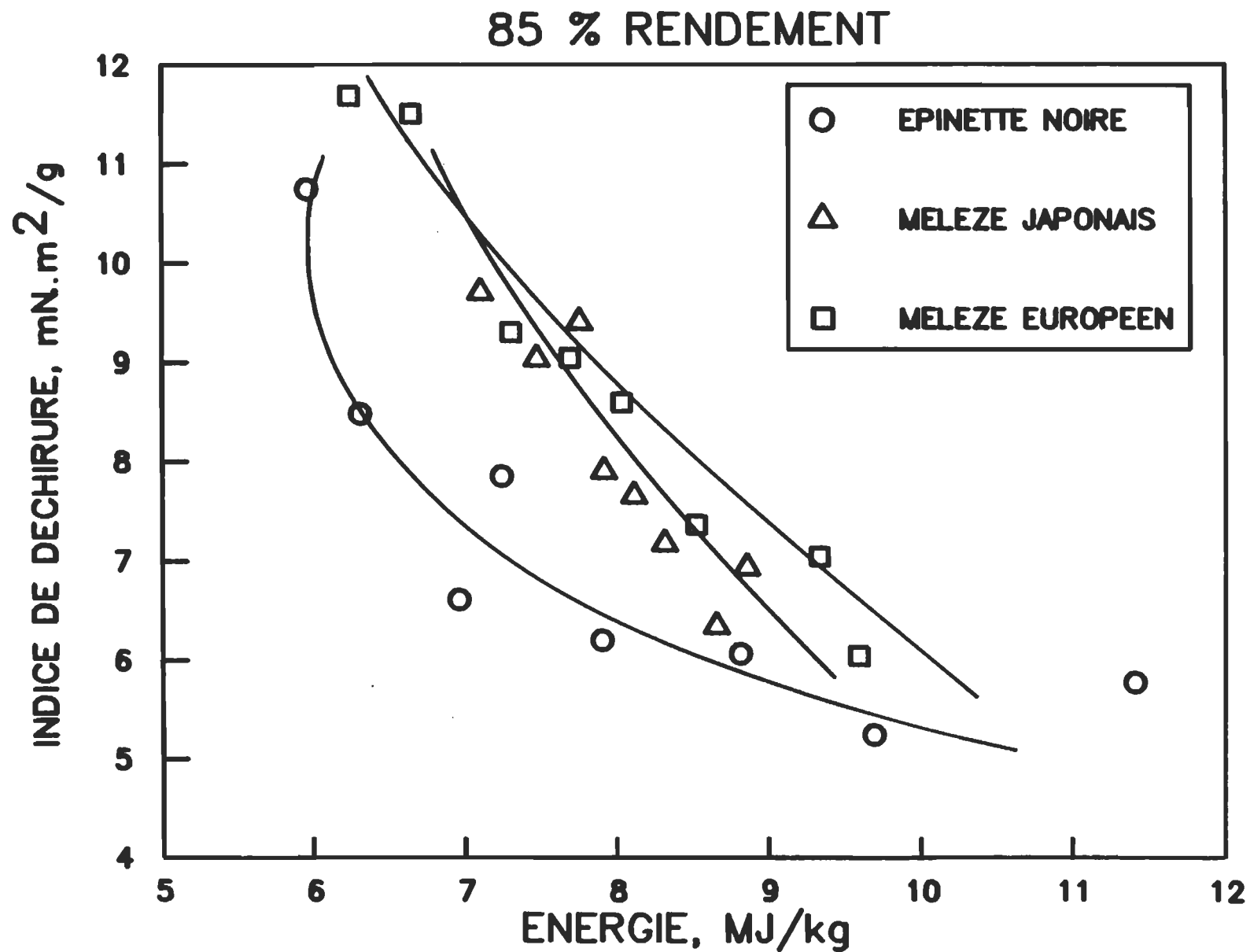


FIGURE 18 : INDICE DE DECHIRURE EN FONCTION DE L'ENERGIE SPECIFIQUE

vis l'industrie papetière car elle a permis aux pâtes chimicomécaniques de démontrer une excellente résistance à la déchirure, 10,5-11,0 mN·m<sup>2</sup>/g contre 6,5-7,5 pour l'épinette à 6,5 MJ/kg. Les pâtes de mélèze japonais et européen ont donné sensiblement les mêmes valeurs de résistance à la déchirure pour un niveau d'énergie constant, ce qui leur vaut un indice d'environ 45 % supérieur à celui de l'épinette noire. Avec des applications d'énergie de plus de 9,5 MJ/kg, les indices de déchirure de chacun des mélèzes sont diminués et croisent la courbe identifiant les valeurs de l'épinette, l'aspect qualitatif de leurs fibres ne joue et ne leur rend plus à partir de ce point une démarcation favorable à la résistance.

Ainsi l'excellente performance à la déchirure des PCM des mélèzes européen et japonais devrait faire de ces pâtes un choix souhaitable pour certains produits papetiers qui exigent de bons indices de déchirure, comme les sacs d'épicerie, par exemple. A traitement égal, nos pâtes de mélèze sont vraiment plus résistantes que celles fabriquées avec des bois feuillus et bien comparables à celles du pin gris [32]. En se référant à la littérature publiée jusqu'à maintenant, seule la PCM de Pinus radiata résiste plus fortement à la déchirure, 12-15 mN·m<sup>2</sup>/g, que les PCM de mélèze au niveau des résineux [49].

La relation tracée entre la résistance à la déchirure et la résistance à la traction qui est illustrée à la figure 19 nous permet d'analyser le comportement des pâtes et de prévoir leurs

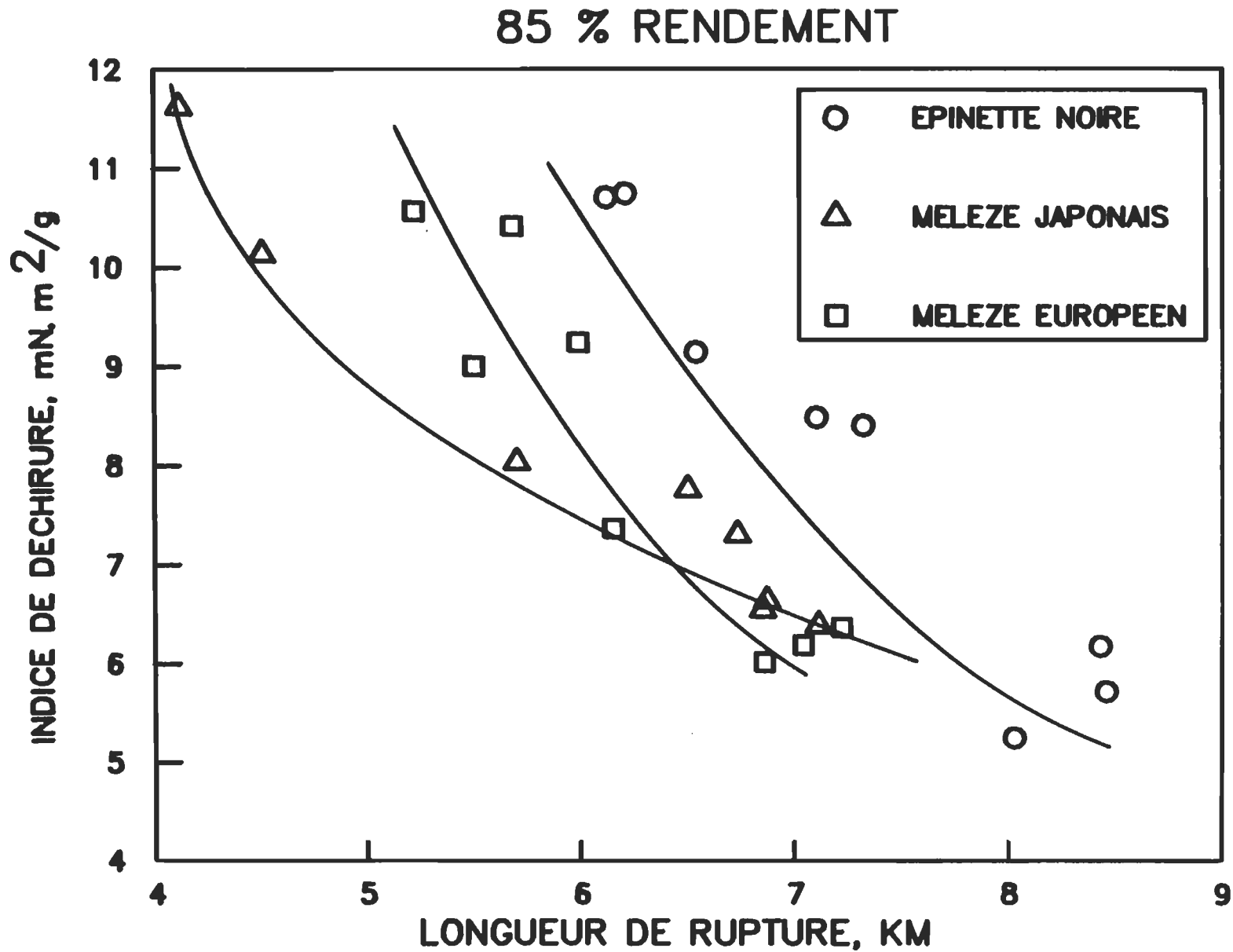


FIGURE 19 : INDICE DE DECHIRURE EN FONCTION DE L'INDICE DE RUPTURE

fins. Il demeure évident que la pâte chimicomécanique d'épinette noire reste la plus intéressante tant pour la déchirure que pour la longueur de rupture lorsque comparée aux deux autres pâtes de mélèze. C'est-à-dire que pour certaines données de résistance à la traction (voir la FIGURE 19), variant entre 5,5 et 8,0 km, la PCM d'épinette noire a toujours réussi à afficher une valeur d'indice de déchirure plus élevée. Par contre, elle n'a et ne pourra jamais surpasser la résistance à la déchirure supérieure des PCM de mélèze lorsque de faibles résistances de rupture, inférieures à 5,5 km, sont suffisantes pour un type de produit. Comme les pâtes chimicomécaniques de tremble et de bouleau [47], la flexibilité et la conformabilité des fibres de mélèze des pâtes alcalines produites ont formé des feuilles avec de très bonnes propriétés pour combattre à la fois la rupture et la déchirure. Ainsi le pH alcalin et la température élevée de nos cuissons ont stimulé la sulfonation et le développement des propriétés physiques [35]. L'apport d'énergie appliquée sur les pâtes devrait toutefois être optimisé de façon à acquérir les caractéristiques papetières optimales pour les fins d'un produit commercial désiré. De bonnes PCM de mélèzes exotiques peuvent être ajoutées à des pâtes de meule afin de les renforcer durant les procédés d'impression [39].

## 5.6 Relations et analyses des propriétés optiques

Les propriétés optiques d'une pâte chimicomécanique avec traitement alcalin en font sa principale lacune. Le désavantage d'une telle pâte est de conserver en même temps les forces physiques, l'opacité et la blancheur pour en faire un produit acceptable pour le papier d'impression. Cependant avec une essence comme le mélèze, nous avons d'abord tenté d'améliorer les fibres mécaniquement. Bien qu'ils soient faibles, nous interpréterons les résultats obtenus des deux propriétés optiques principales qui sont la blancheur et le coefficient de diffusion de la lumière ou l'opacité.

### 5.6.2 La blancheur du papier

La blancheur du papier étant mesurée par réflexion diffuse, la rugosité de la surface devient un paramètre influençable sur la blancheur mesurée et cette rugosité dépend elle-même de l'état des fibres, donc de l'énergie spécifique et de l'indice d'égouttage. La blancheur dépend également de la couleur du bois avec lequel on fabrique la pâte et des conditions de cuisson du procédé. Pour plusieurs essences de bois, les pigments naturels de la matrice sont partiellement dissouts durant le prétraitement [37], comme les produits extractibles du mélèze qui affectent le degré de blancheur de la pâte. De plus, il y a toujours le risque que la lignine tourne au jaune ou au brun pendant la cuisson et le raffinage par une condensation ultérieure, et ce type de

coloration semble être impossible à blanchir [37].

Lorsque les pâtes subissent plusieurs passes successives à travers les disques du raffineur, une contamination par les ions métalliques des disques peut devenir néfaste pour la blancheur [34]. Nous savons que le bois de mélèze contient un fort pourcentage de produits extractibles (arabinogalactoses, composés flavanoïques...) responsables de la couleur foncée du bois. C'est pourquoi il est encore si difficile d'incorporer la pâte de cette essence dans la fabrication de papier journal. Les nombreux groupements quinoniques qui colorent la pâte de mélèze absorbent fortement la lumière ne laissant réfléchir qu'une faible partie du rayon lumineux.

Si nous regardons les résultats du tableau 5, un écart important sépare l'épinette noire des deux mélèzes. La PCM de l'essence commerciale a une valeur moyenne de 39,2 % de blancheur comparativement à 29,7 % pour le mélèze européen et 28,2 % pour le mélèze japonais, soit une supériorité de plus de 10 points en moyenne pouvant aller jusqu'à 14 points selon l'indice d'égouttage pour des conditions égales d'opération (voir figure 20). Cette différence reflète la nature du bois des essences étudiées.

Le mélèze japonais contenant plus de matières extractibles que l'essence européenne se voit donc attribuer un degré de blancheur inférieur, 1,5 points, 5 %, en moins.

TABLEAU 5 : NIVEAU DE BLANCHEUR DES PCM

( 85 % RENDEMENT – 300 CSF )

<u>ESSENCE</u>	<u>VALEURS OBTENUES</u>			<u>VALEUR MOYENNE</u>
EPINETTE NOIRE	43.1	39.8	38.9	→ 39.2
	38.7	38.9	35.6	
MELEZE EUROPEEN	30.0	31.2	28.5	→ 29.7
	29.1			
MELEZE JAPONAIS	28.3	28.3	28.0	→ 28.2

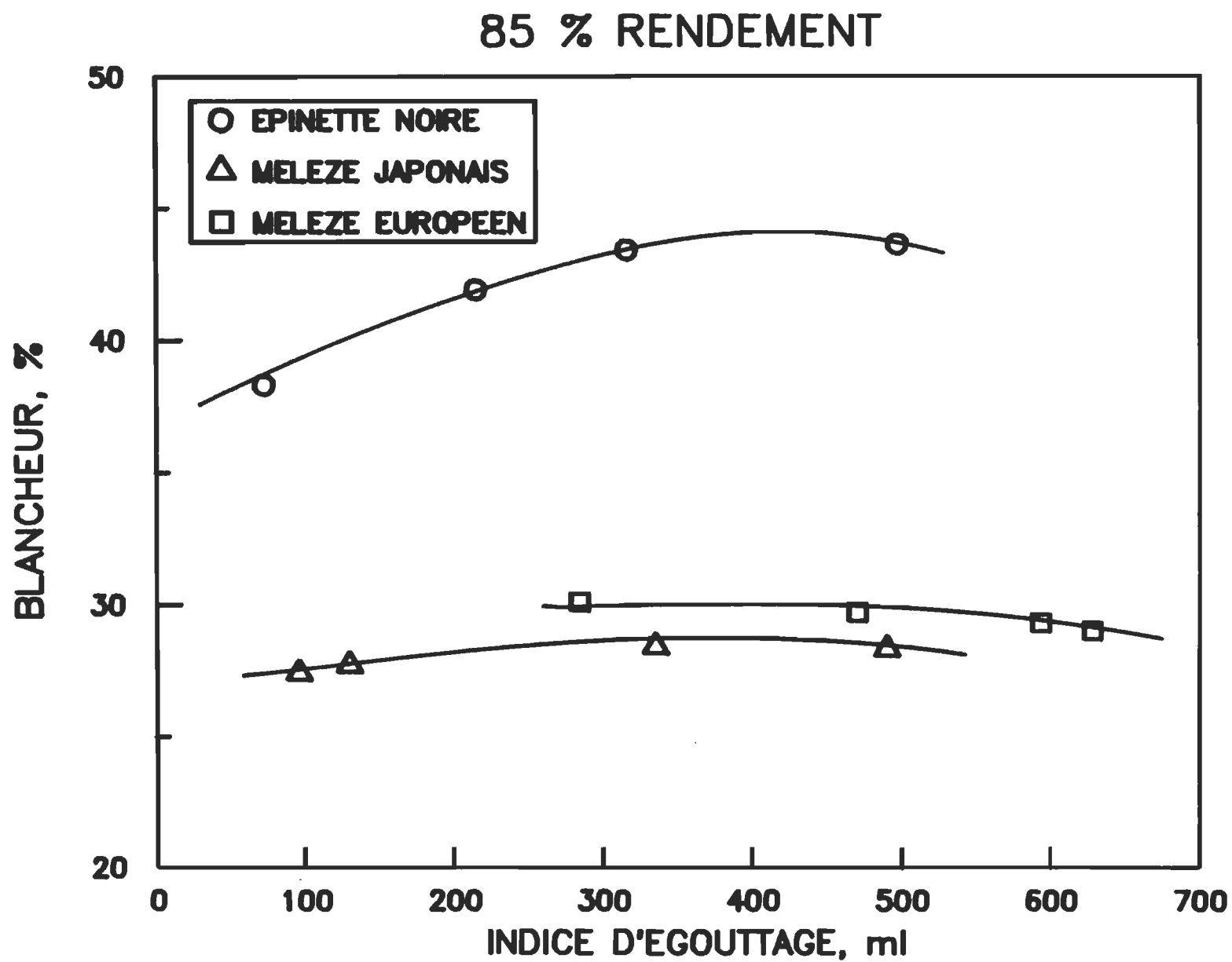


FIGURE 20 : BLANCHEUR EN FONCTION DE L'INDICE D'EGOUTTAGE



En comparant les degrés de blancheur des trois essences, il est facile d'expliquer l'écart qui les sépare mais pour l'ensemble du procédé chimicomécanique, d'aussi faibles valeurs sont la conséquence des conditions de cuisson qui ont été déterminées lors des expérimentations. Les paramètres pH, temps, température et nature des agents chimiques utilisés sont de ceux qui engendrent une influence négative sur la blancheur. L'addition en très faible quantité de NaOH dans notre liqueur de cuisson pour ajuster le pH vers une valeur alcaline de 12 produit un noircissement de la pâte. Donc toute cuisson à pH de 12 affecte énormément la blancheur de la pâte et surtout pour les conifères car nous verrons à la section suivante que le coefficient de diffusion de la lumière devient dans de telles conditions très faible [32,34,35] parce que la sulfonation et l'effondrement de la fibre sont améliorés. Un pH de 7-8 serait préférable pour conserver une certaine blancheur [35]. Un temps de résidence élevé à l'intérieur du lessiveur de mêmes que de fortes températures ont abaissé le paramètre blancheur de nos pâtes [33,35]. Avec des conditions initiales de 145 °C et de 20 min. de résidence, une élévation de température de 10 °C ou une variation de 20 min. peut causer une perte de blancheur de près de 3 points sur une PCM de bois feuillu [33]. Selon la figure 21, cette affirmation s'applique à la courbe de l'épinette noire tandis qu'une perte plus faible par intervalle de temps caractérise la courbe de chacun des mélèzes car les produits extractibles qu'ils contiennent font apparaître prématurément le plateau des degrés de blancheur maximale pouvant être obtenue.

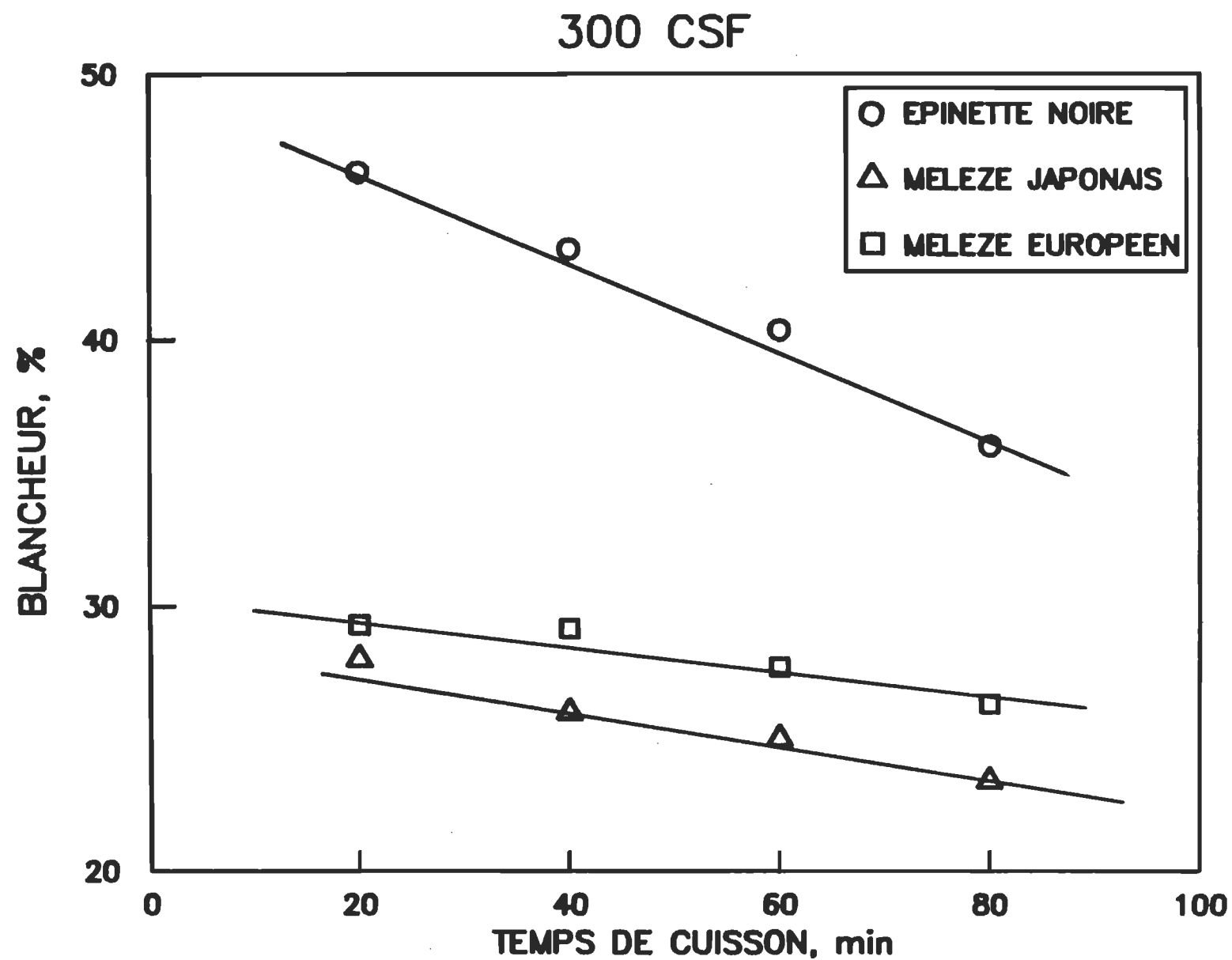


FIGURE 21 : INFLUENCE DU TEMPS DE CUISSON SUR LA BLANCHEUR

Même si le sulfite de sodium a pour effet de blanchir les pâtes, l'utilisation seule de ce composé, 5 % en solution, réduit davantage la blancheur [22,24] contrairement aux pâtes mécaniques où le procédé n'emploie aucun agent chimique de réaction. Dans ce dernier cas, la littérature mentionne des niveaux de blancheur de 40-42 % et 39-40 % pour des PMR et PTM de mélèze japonais ou européen. Ce qui équivaut à la blancheur d'une PCM d'épinette. Les PCTM de mélèze exotique réalisées par Leboeuf [5] ont donné des degrés de blancheur supérieurs à nos PCM lorsqu'il a opéré avec des charges voisines de sulfite de sodium.

La plupart des pâtes chimicomécaniques fabriquées à partir d'essences feuillues ont une blancheur plus haute que celles des mélèzes. A rendement égal et pour un pH alcalin, les pâtes de peuplier, de bouleau et d'érable réfléchissent la lumière à 52 % environ [32], 23 points de plus que les PCM des mélèzes. Par contre, les pâtes de pin gris confrontées à un problème de résine ont des valeurs égales ou moindres de 2-3 points [32,41]. Enfin la blancheur de nos pâtes de mélèze et d'épinette fabriquées en laboratoire est très proche de celle des mêmes pâtes PCM conçues et citées par d'autres chercheurs [32,34,41,44].

Malheureusement, les pâtes chimicomécaniques écrues de mélèze japonais ou européen ne peuvent rencontrer les exigences qualitatives du papier journal où des blancheurs de 60-65 % sont demandées [37]. De plus, la réversion de couleur à la lumière

ambiante est prononcée pour une pâte chimicomécanique. En général cette réversion de couleur est causée par la lignine de la pâte qui après avoir été sulfonée accentue le processus [37]. Ces pâtes ne démontrent donc aucune affinité pour diminuer les coûts du blanchiment. Plusieurs travaux futurs devront être entrepris de façon à améliorer la blancheur des PCM écrues de mélèze exotique pour en faire des pâtes économiquement accessible au processus de blanchiment.

### 5.6.3 Le coefficient de diffusion de la lumière

Parce que l'opacité de nos PCM est assez élevée et ne varie pas tellement, nous nous sommes servis du coefficient de diffusion de la lumière qui se rapproche d'une opacité pondérée. La dispersion de la lumière ou l'opacité d'une pâte chimicomécanique, en dépit d'un rendement élevé, donne de bons résultats [37]. Contrairement au gain des résistances mécaniques causé par le traitement chimique, l'opacité du papier perd de l'importance [24]. Comme nous l'avons déjà cité, cette diminution est causée d'abord et avant tout par la perte de dispersion des fibres longues et rigides [48]. L'hydrolyse et la sulfonation alcaline des copeaux, à l'opposé d'un traitement acide, contribuent au ramollissement, à la souplesse et à une conservation de la longueur moyenne des fibres, et rendent donc la feuille moins opaque [47].

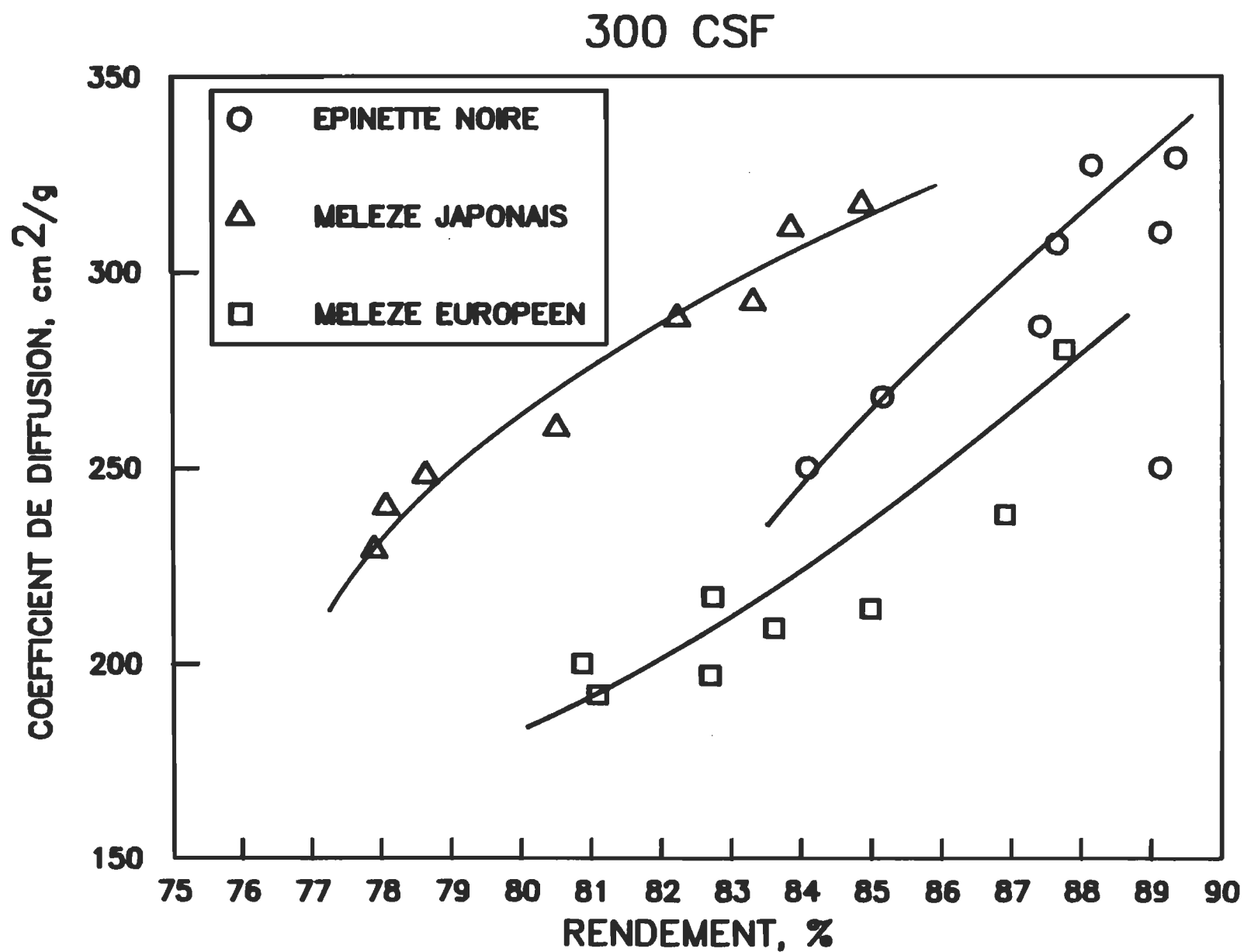


FIGURE 22 : COEFFICIENT DE DIFFUSION EN FONCTION DU RENDEMENT

En traçant la courbe du coefficient de diffusion de la lumière en fonction du rendement (voir figure 22), on remarque que la feuille devient de plus en plus opaque lorsque le rendement augmente. A faible rendement, les parois de la fibre subissent un effondrement plus complet créant un réseau fibreux moins lâche formant moins d'interfaces air-fibres qui affaiblissent la quantité de lumière transmise. Cette interprétation admet aussi qu'une augmentation du temps de résidence des copeaux dans le lessiveur réduit l'opacité de nos feuilles car le rendement en est diminué. La rigidité des fibres affecte l'opacité d'un papier. Une fibre rigide créera moins de liens, un nombre plus élevé de vides, provoquant une transmission ou un passage à travers la feuille beaucoup plus tortueux et plus complexe pour la lumière, donc une opacité plus élevée. C'est pourquoi le mélèze japonais a démontré un coefficient de diffusion supérieur. Cependant nous ne pouvons expliquer l'opacité inférieure du mélèze d'Europe par rapport à l'épinette noire. Pourtant avec des conditions similaires d'opération, la fibre d'épinette noire étant moins rigide à fournir un papier de densité supérieure. Ce résultat s'observe à tous les niveaux de rendement obtenus lors des expérimentations.

D'autre part, la lumière traverse plus facilement la feuille de papier si l'on applique plus d'énergie lors du raffinage (voir figure 23). Pour une même essence, la production de fines causée par une augmentation de l'énergie appliquée comble les vides du réseau fibreux puis l'opacité décroît. Exactement comme en

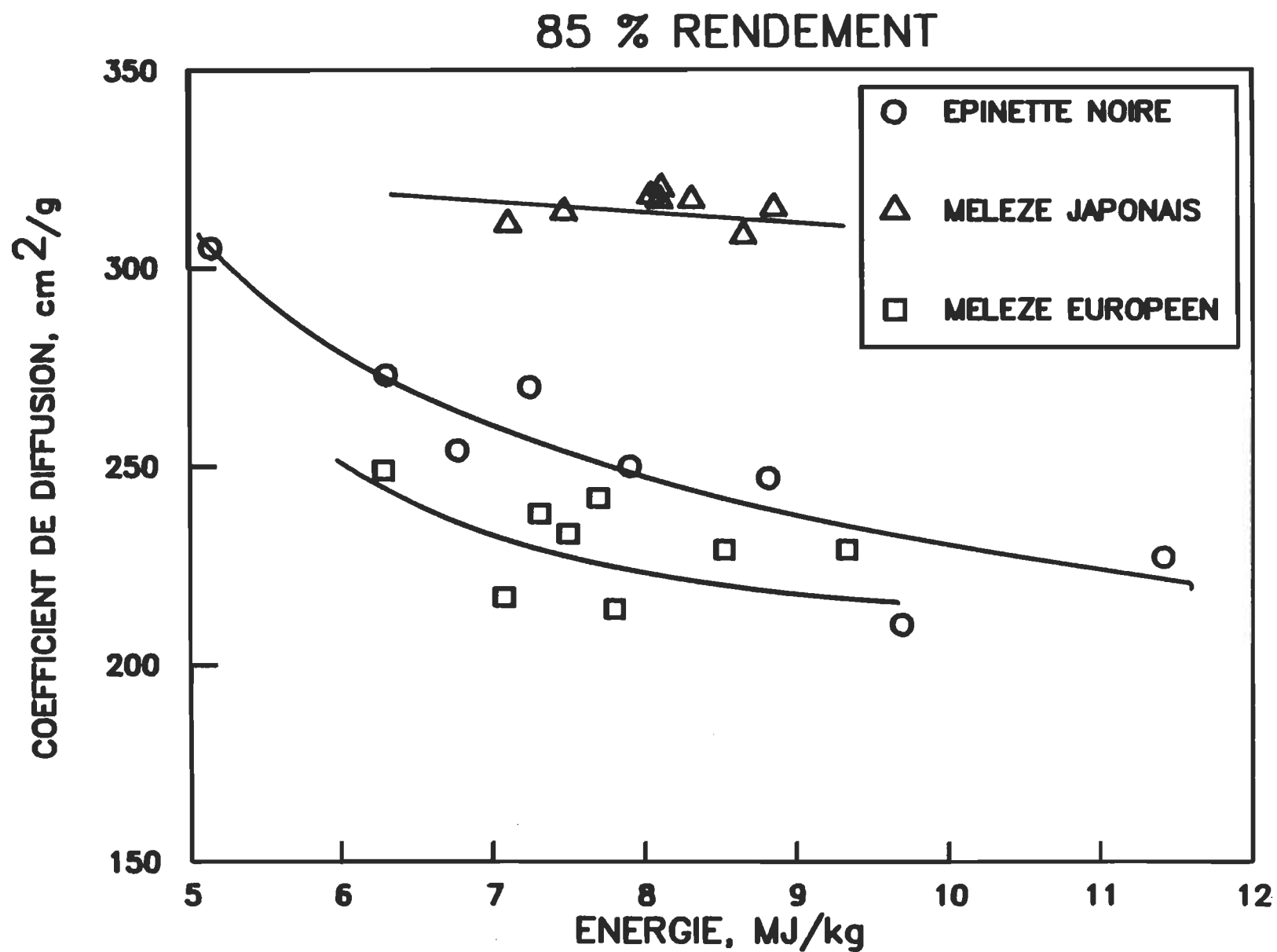


FIGURE 23 : COEFFICIENT DE DIFFUSION EN FONCTION DE L'ENERGIE

fonction du rendement, le mélèze japonais a produit une pâte dont le coefficient de diffusion est le plus haut. Sur cette figure, nous ne pouvons à nouveau expliquer l'opacité plus grande de l'épinette noire vis-à-vis le mélèze européen. Toutefois, si nous basons notre analyse sur la distribution des fractions de fibres, nous savons que les pâtes du mélèze japonais possèdent une proportion de fines (P200) plus grande que le mélèze européen ou l'épinette, 21,1 % contre 16,2 et 14,0 % respectivement à un rendement de 85 %. Donc si une augmentation de fines abaisse l'opacité d'un papier, c'est l'opacité du mélèze japonais qui devient inexplicable face aux deux autres essences. Mais l'interrelation des paramètres comme la rigidité des fibres et la production de fines rend ambiguë la théorie que peuvent dissimuler ces courbes. Selon le rendement ou l'énergie spécifique, toutes les PCM produites ont eu des coefficients de diffusion de la lumière compris entre 200 et 350 cm<sup>2</sup>/g, ce qui est très faible comparativement à une pâte mécanique de meule, 650-700 cm<sup>2</sup>/g, ou une pâte mécanique de raffineur, 500-550 cm<sup>2</sup>/g [22]. Les pâtes mécaniques de raffineur, thermomécaniques ou chimicothermomécaniques de mélèze japonais ou européen ont, selon l'étude de Leboeuf [5], un coefficient supérieur à nos PCM, soit une différence en opacité de 1 à 8 % due à la rigueur de notre traitement chimique et à la longueur de fibre plus courte des jeunes mélèzes qu'il a employés. Des concentrations de sulfite de sodium et des temps de cuisson relativement plus élevés que les PCTM réduisent davantage la valeur de l'opacité. Si l'on compare nos PCM de mélèze exotique à des PCM de mélèze laricin [5,41],



les résultats du coefficient sont comparables et demeurent à peu près dans le même intervalle que ceux que nous avons obtenus, 250-350 cm<sup>2</sup>/g, mais il a été possible d'atteindre avec des PCTM jusqu'à 97 % d'opacité selon certaines conditions préétablies. Il en est de même pour les PCM de bouleau blanc, d'érable et de tremble [32,35,47], ainsi que pour le pin gris et l'épinette noire qui ont fait l'objet d'une autre étude littéraire [32].

Etant donné que la fabrication du papier journal ou du papier-magazine exige une opacité et une blancheur respectable à la fois, il devient difficile de substituer totalement la pâte de meule par des pâtes chimicomécaniques de mélèze exotique. Néanmoins il pourrait être possible d'utiliser environ 50 % de PCM blanchie en addition aux pâtes de meule pour la fabrication de papiers journaux. En regard à d'autres usages, les produits d'emballage par exemple, l'opacité de nos pâtes de mélèze pourrait être ajustée ou améliorée par une augmentation du poids de base ou par addition de glaise lorsqu'il le faut [37].

#### 5.7 Effet du temps de cuisson sur les propriétés

Le temps de résidence des copeaux à l'intérieur du lessiveur fut le seul paramètre expérimental que nous ayons fait varier entre 20 et 80 min. par des intervalles de 20 min., soit 4 essais différents. Une cuisson prolongée provoque une perte de rendement. Pour des raisons environnementales, il est à

conseiller de tenir compte du potentiel de pollution qu'un procédé nécessitant un traitement chimique peut occasionner. Selon le taux de rendement atteint, il importe de contrôler les effluents par un système de recyclage des eaux usées [49], mais l'un des avantages majeurs qui justifie le développement des PCM est la possibilité de produire une pâte forte ayant une faible demande biologique d'oxygène et de respecter les normes gouvernementales [29] contrairement aux pâtes Kraft et sulfite acide dont les faibles rendements entraînent une grande consommation d'oxygène pour éliminer les composés organiques de leur liqueur résiduaire [32]. Aujourd'hui même si les normes environnementales sont de plus en plus strictes vis-à-vis les pâtes chimiques, les PCM ont l'avantage d'engendrer des coûts moindres pour l'implantation d'un système de récupération des liqueurs. D'autre part, le temps de cuisson engendre également un effet notable sur le raffinage des copeaux car un ramollissement des parois de la fibre permet de mieux la travailler. L'avantage de prolonger le temps de cuisson réside donc principalement dans la réduction d'énergie spécifique pour atteindre un indice d'égouttage donné. La relation est illustrée à la figure 24. L'effet a lieu sur l'ensemble mais semble moins important sur le mélèze japonais à de bas indices d'égouttage. En passant d'un temps de cuisson de 20 min. à un temps de cuisson de 80 min., pour un indice d'égouttage de 200 ml, nous avons réduit l'énergie spécifique d'environ 19 % pour l'épinette noire et le mélèze européen comparativement à 6 % seulement pour l'essence japonaise. Il est à noter cependant que la précision de ce

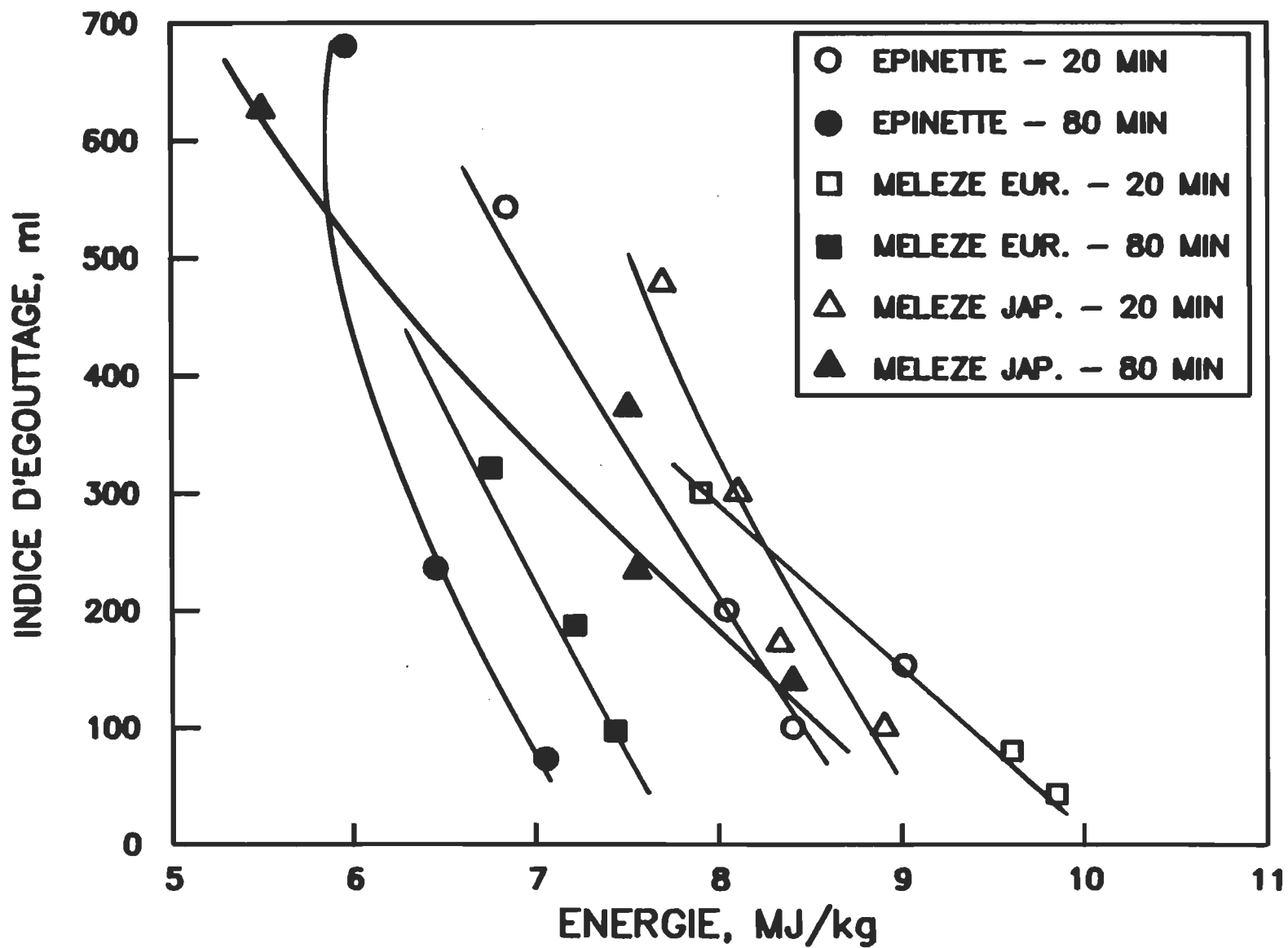


FIGURE 24 : INFLUENCE DU TEMPS DE CUISSON SUR L'ENERGIE SPECIFIQUE

graphique n'est pas très grande, sa conception ne peut servir qu'à mieux visualiser l'effet positif d'une augmentation du temps de cuisson.

On observe le même phénomène, d'après la figure 25, sur la résistance à la traction [33,35,49] ou sur la résistance à l'éclatement. L'obtention d'un indice de rupture donné est réalisable à un indice d'égouttage plus élevé si l'on cuit les copeaux plus longuement. Ceci est une bonne indication que la sulfonation prolongée donne à la pâte une meilleure abilité à former des liens, à créer des sites de liaisons interfibres et à susciter les parois de la fibre à une plus grande fibrillation [35]. Avec les mélèzes exotiques, lorsque l'on est passé de 20 à 80 min. de cuisson, la résistance à la rupture fut augmentée de l'ordre de 40 % pour un indice d'égouttage constant de 200 ml, et seulement de 10 % environ pour l'épinette. A 200 ml de CSF, la résistance à la rupture de l'épinette noire passe par une valeur maximale pour ensuite chuter. Cette chute est la conséquence d'une surproduction de fines. Cette surproduction diminue fortement la longueur moyenne des fibres du papier. Ayant trop de fines, la cohésion ou les contacts solides deviennent difficiles et le réseau fibreux perd de sa force.

Remarquons que la longueur de rupture pour l'épinette noire cuite durant 20 min. surclasse la pâte de mélèze japonais cuite durant 80 min..

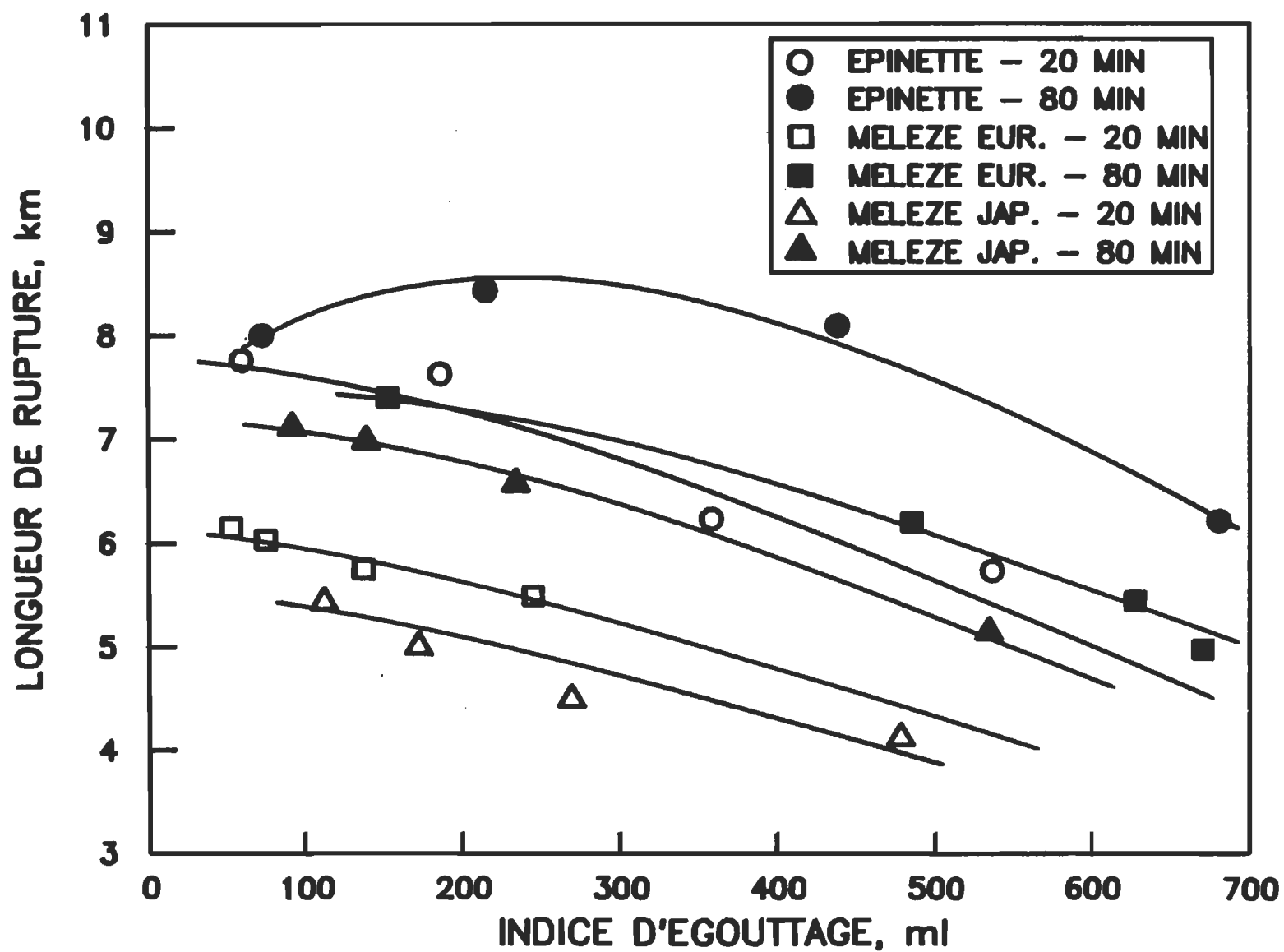


FIGURE 25 : INFLUENCE DU TEMPS DE CUISSON SUR LA RUPTURE

L'indice de déchirure diminue (voir figure 26) malgré que la longueur moyenne des fibres augmente en fonction du temps de résidence. Comme la rigidité des fibres représente souvent une relation positive avec la déchirure, nous prétendons que l'assouplissement des fibres a causé cet effet néfaste [5]. Cette diminution de résistance varie entre 10 et 25 % pour les mélèzes japonais et européen pour un indice d'égouttage sous les 200 ml. La perte de résistance est moins importante pour l'épinette noire. Son indice de déchirure se voit diminué régulièrement de 5 % sur toute la longueur de l'axe X, c'est-à-dire sur l'ensemble des valeurs de CSF.

D'après une étude effectuée avec une pâte chimicomécanique de tremble, une augmentation du temps de résidence des copeaux à l'intérieur du lessiveur a également amélioré la résistance à la déchirure de cette pâte [33]. D'autres chercheurs qui ont travaillé sur des PCM de Pinus radiata ont conclu que cette variable expérimentale avait une influence presque nulle sur l'indice de déchirure [49]. Il faut donc croire que l'essence de bois utilisée réagit différemment à une variation du temps de cuisson.

Enfin, comme nous l'avions précisé auparavant, alors qu'en général les propriétés mécaniques du papier bénéficient d'une durée de cuisson plus longue, les propriétés optiques subissent plutôt une détérioration dans ce procédé de mise en pâte.

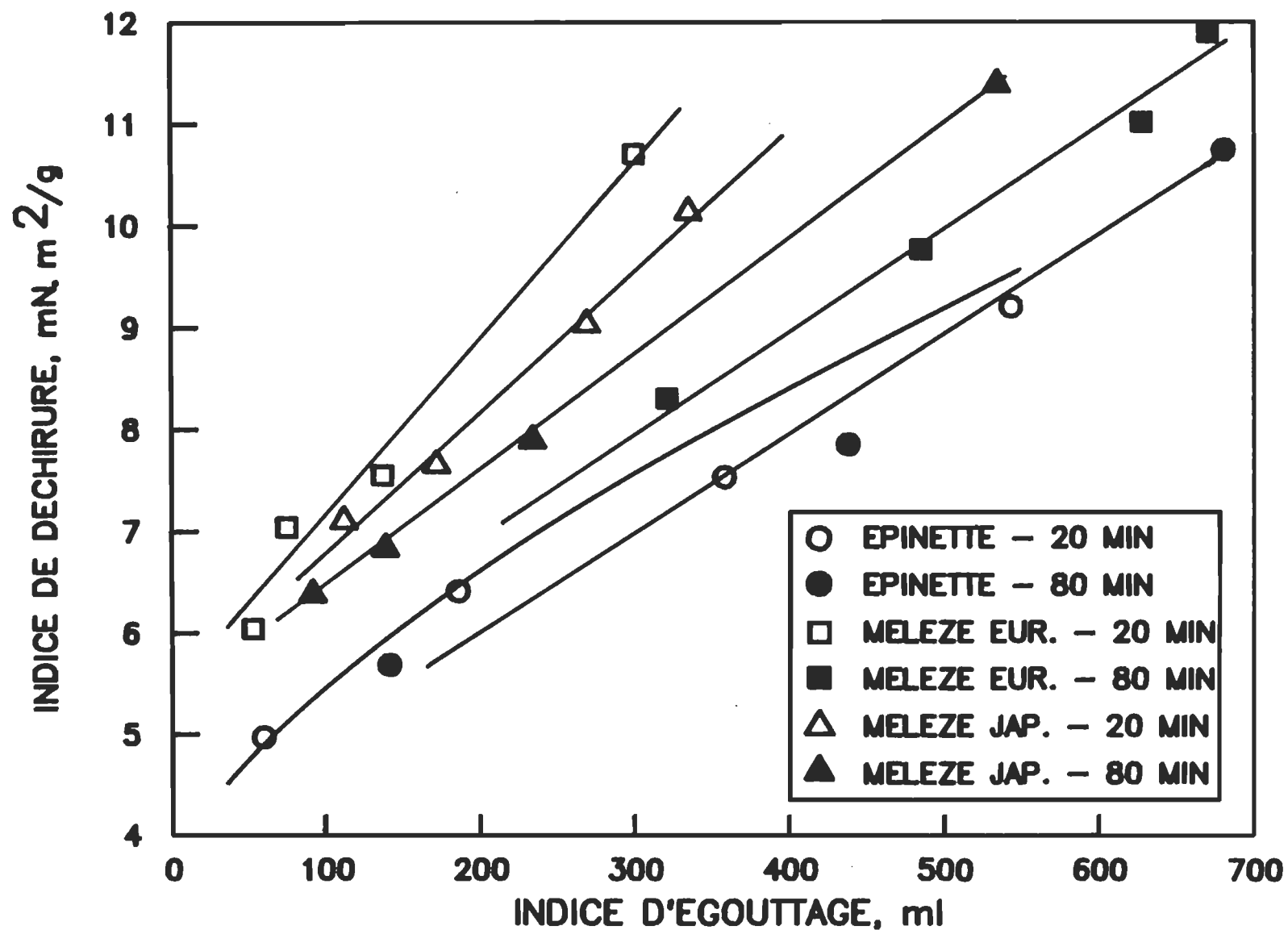


FIGURE 26 : INFLUENCE DU TEMPS DE CUISSON SUR LA DECHIRURE

### 5.8 Blanchiment des pâtes

Le blanchiment est une étape nécessaire dans la production de pâtes à haut rendement au sulfite afin d'obtenir une pâte de qualité acceptable au niveau de la blancheur. Nous n'avons pas effectué de blanchiment sur nos pâtes mais des essais réalisés sur des pâtes chimicomécaniques de mélèze laricin nous ont donné une idée assez précise des résultats possibles.

Dépendamment de l'utilisation que nous voulons faire des pâtes chimicomécaniques de mélèzes japonais ou européen, il faut tenir compte du traitement favorable pour arriver à un certain niveau de blancheur désiré. Nos pâtes écruës de mélèze n'affichant que des degrés de blancheur d'environ 30 % peuvent être blanchies pour atteindre une blancheur de près de 60 % avec 4 % de  $H_2O_2$  et 3 % de NaOH [24,46]. En se référant aux travaux exécutés par Daneault [46], puis en faisant une simple transposition de ses résultats expérimentaux à partir de PCM de mélèze laricin avec nos PCM de mélèze exotique, nous aurions un aperçu assez fiable du degré de blancheur atteignable. Selon ses travaux résumés aux tableaux 6 et 7, un gain maximum de 31,8 points de blancheur est possible pour la PCM de mélèze en appliquant dans un premier stage 6 % de peroxyde d'hydrogène et 3 % d'hydroxyde de sodium, puis dans un second stage 1 % d'hydrosulfite de sodium. En ramenant cette augmentation de 31,8 points à nos pâtes de mélèzes exotiques, nous pourrions obtenir une valeur maximale de 62 % de blancheur mais à des coûts



## % BLANCHEUR

CHARGE DE NaOH, %	CHARGE DE H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> , %				
	1	2	3	4	6
1	40.5	48.2	53.0	55.8	57.7
2	42.5	50.0	55.5	57.8	61.4
3	45.5	53.8	57.8	60.9	64.5
PATE ECRUE PCM : 33.5					

PATE ECRUE : 20.0 g  
 PRETRAITEMENT Na<sub>5</sub> DTPA : 0.5 %  
 SULFATE DE MAGNESIUM : 0.1 %  
 SILICATE DE SODIUM : 5.0 %

TEMPS DE RETENTION : 120 min.  
 CONSISTANCE DE LA PATE : 15 %  
 TEMPERATURE : 60°C

REF. : Resultats tires de "Brightening of ultra-high yield Larch pulps" [46]

TABLEAU 6 : EFFET DE LA CHARGE DE PEROXYDE ET DE LA CHARGE D'HYDROXYDE DE SODIUM SUR LE BLANCHIMENT DES PATES

## % BLANCHEUR

CHARGE DE NaOH, %	1% P	1% P + 1% HS	2% P	2% P + 1% HS	3% P	3% P + 1% HS	4% P	4% P + 1% HS	6% P	6% P + 1% HS
1	40.5	41.8	48.2	49.2	53.0	54.8	55.8	56.4	57.7	58.4
2	42.5	43.1	50.0	51.6	55.5	56.9	57.8	58.2	61.4	63.1
3	45.5	46.6	53.8	55.6	57.8	58.6	60.9	61.8	64.5	65.3
P : Peroxyde d'hydrogene    HS : Hydrosulfite de sodium										

Liqueur hydrosulfitique : Consistance : 4 %  
 Temperature : 60° C  
 Temps de reaction : 1 hre  
 Tripolyphosphate de sodium : 0.5 %  
 pH : 5.5

Ref. : Resultats tires de "Brightening of ultra-high yield larch pulps" [46]

TABLEAU 7 : EFFET D'UN DEUXIEME STAGE A L'HYDROSULFITE  
DE SODIUM SUR UNE PCM DE RAFFINEUR

d'opération élevés pour l'industrie.

Tout cela ne met en cause qu'une valeur purement théorique. Un degré de blancheur légèrement supérieur ou inférieur pourrait être pratiquement et laborieusement confirmé mais cette valeur transposée de 62 % nous indique pareillement que les pâtes chimicomécaniques blanchies de mélèze japonais ou européen ne peuvent servir à la fabrication entière d'un papier journal de haute qualité.

Lors du blanchiment de telles pâtes, il est financièrement préférable de diminuer les charges de peroxyde étant donné que l'on ne peut les blanchir à des degrés très remarquables. L'emploi d'un second stage à l'hydrosulfite de sodium abaisse la charge de peroxyde d'environ 0,5 à 1 % et permet d'obtenir une blancheur quasi équivalente tout en réduisant les coûts du procédé [14].

Il nous apparaît donc difficile de blanchir économiquement des pâtes chimicomécaniques de mélèze exotique afin de rencontrer les exigences du marché. Le fort taux de produits extractibles que contiennent les mélèzes ne permet pas l'utilisation d'agents tels que le chlore, le dioxyde de chlore et l'hypochlorite pour le premier stage de blanchiment. Cette contrainte ne peut permettre que l'emploi du peroxyde d'hydrogène et de l'hydrosulfite de sodium comme agents de blanchiment [14,46].

Il semblerait qu'à l'avenir, pour espérer augmenter la

blancheur de ces PCM de mélèze, il serait souhaitable d'exercer sur celles-ci un prétraitement avec des produits comme l'ozone, l'oxygène, l'acide acétique ou le dioxyde d'azote qui réduiront les groupements chromophores et augmenteront l'efficacité du peroxyde dans un premier stage [46].

L'effet des charges d'agents de blanchiment favorisent les propriétés mécaniques du papier. Concernant la longueur de rupture, une amélioration de 15 % fut produite sur la pâte chimicomécanique de mélèze laricin après blanchiment [14,46]. L'indice d'éclatement, d'autre part, fut amélioré de 14 % avec une charge totale de 6 % de peroxyde au premier stage. Seule la résistance à la déchirure est demeurée constante ou très légèrement influencée [46].

## CHAPITRE 6

### BREVE ANALYSE ECONOMIQUE

En joignant un chapitre financier au projet, nous avons tenté de cumuler tous les coûts qu'une production de pâte chimicomécanique peut engendrer. Il est bien entendu que les coûts totaux de fabrication des pâtes de chacune des essences à l'étude ne peuvent se comparer au dollar près avec ceux d'une production industrielle car notre approche expérimentale ne peut tenir compte de l'ensemble des variables qui surviennent en industrie. Le taux de production journalière, la récupération de vapeur et la nature des systèmes de production en sont des exemples. Cependant nous pouvons tenter d'ajuster le plus possible les coûts que nous calculerons afin d'obtenir une valeur des plus réelles.

L'ensemble des coûts comprend les frais reliés à l'approvisionnement en matière ligneuse, les frais reliés à l'énergie requise pour les phases de cuisson et de raffinage, puis les frais reliés aux agents chimiques pour la préparation de la liqueur de cuisson.

Pour bien comparer les coûts de production, nous devons ramener tous les coûts variables en dollars canadiens de 1988. En se basant sur certaines études économiques [6,51] et quelques statistiques, nous avons pu actualiser uniformément tous les

coûts de façon à rendre l'analyse plus profitable. Il nous semble inutile de démontrer les calculs s'y rattachant. Par contre, mentionnons qu'un taux moyen d'élévation de l'indice des prix de 4.6 % par an fut utilisé [6].

### 6.1 Coût de la matière fibreuse

Le bois est la ressource principale de la fabrication des pâtes et papiers. Son coût dépend grandement de sa disponibilité, de sa localisation et surtout de sa qualité fibreuse pour une bonne formation du papier. Le coût d'approvisionnement en bois varie donc selon l'essence utilisée.

D'après le Syndicat des Producteurs de Bois, la Fédération des Producteurs de bois du Québec et Statistiques Canada [6], les coûts d'approvisionnement en bordure d'usine étaient pour l'an 1988, de \$27.32 et \$22.00 pour l'épinette noire et les mélèzes respectivement. Ce coût se rattache à un volume de bois non écorcé de un mètre cube apparent.

La densité moyenne du bois de chacune des essences étant de 0.38 et 0.51 g/cm<sup>3</sup> (épinette versus mélèze exotique) et le facteur de transformation entre les m<sup>3</sup> apparents et les m<sup>3</sup> réels étant de 65%, si nous prenons 12% comme étant le pourcentage moyen d'écorce sur une bille de bois, nous pouvons calculer le coût payé pour une tonne de bois sec.

Coût de l'épinette noire;

$$\frac{\$27.32}{\text{m}^3 \text{ app.}} \times \frac{1 \text{ m}^3 \text{ app.}}{0.65 \text{ m}^3 \text{ réel}} \times \frac{1 \text{ cm}^3}{0.38 \text{ g}} \times 1.12 \times \frac{1 \text{ m}^3}{10^6 \text{ cm}^3} \times \frac{10^6 \text{ g}}{\text{t}} = \$123.88$$

\$123.88 par tonne de bois sec.

Coût du mélèze japonais et européen;

$$\frac{\$22.00}{\text{m}^3 \text{ app.}} \times \frac{1 \text{ m}^3 \text{ app.}}{0.65 \text{ m}^3 \text{ réel}} \times \frac{1 \text{ cm}^3}{0.51 \text{ g}} \times 1.12 \times \frac{1 \text{ m}^3}{10^6 \text{ cm}^3} \times \frac{10^6 \text{ g}}{\text{t}} = \$74.33$$

\$74.33 par tonne de bois sec.

Cependant le rendement obtenu en pâte influence également le coût relié à la matière fibreuse. Si nous prenons un rendement moyen de 87% pour l'épinette noire et de 83% pour les mélèzes exotiques, nous obtenons les coûts effectifs à l'approvisionnement pour la production d'une tonne de pâte sèche.

PCM d'épinette noire;

$$\frac{\$123.88}{\text{tonne de bois sec}} \times \frac{100 \text{ kg bois sec}}{87 \text{ kg pâte sèche}} = \frac{\$142.39}{\text{tonne de pâte sèche}}$$

PCM de mélèze exotique;

$$\frac{\$74.33}{\text{tonne de bois sec}} \times \frac{100 \text{ kg bois sec}}{83 \text{ kg pâte sèche}} = \frac{\$89.55}{\text{tonne de pâte sèche}}$$

Par leur densité élevée, les bois de mélèze exotique occasionnent une économie de plus de \$50 par tonne de pâte

produite, soit une économie de 60% directement reliée à l'approvisionnement de matière ligneuse.

## 6.2 Coûts énergétiques

Les phases de cuisson et de raffinage lors de la préparation des pâtes exigent différents types d'énergie. Pour la cuisson, on doit fournir au lessiveur l'énergie sous forme de vapeur de façon à maintenir constante la température de la liqueur chimique et des copeaux. Une bouilloire électrique générant de la vapeur assurait le maintien de la température. Cette production de vapeur peut donc se relier facilement à un coût d'énergie électrique.

En se basant sur des calculs des principes fondamentaux, nous pouvons calculer l'énergie requise ( $q$ ) pour amener la liqueur et les copeaux introduits dans le lessiveur à une température de 170 °C, température choisie lors de l'élaboration expérimentale. Si nous considérons une température initiale de 25 °C (température ambiante de la pièce), nous avons;

$$q = m_L C_{pl} t_L + m_B C_{pb} t_B$$

$$q = (m_L C_{pl} + m_B C_{pb}) t \quad \text{où}$$

$q$  = énergie calorifique requise (KWh/tonne pâte sèche)

$m_L$  = masse de liqueur                       $m_B$  = masse de bois

$C_{pl}$  = chaleur spécifique de la liqueur

$C_{pb}$  = chaleur spécifique du bois

$t$  = élévation de la température à l'intérieur du lessiveur



Si l'on prend pour acquis que la densité de la liqueur équivaut à celle de l'eau, soit 1 g/cm<sup>3</sup> ou 1 g/ml, on considère dans ce cas que la chaleur spécifique de la liqueur équivaut à celle de l'eau, soit 1,0 cal/g °C. La chaleur spécifique moyenne du bois est de 0,55 cal/g °C [52].

D'autre part pour obtenir les masses utiles au calcul, nous devons considérer les rendements obtenus.

$$mB \text{ épinette} = \frac{1000 \text{ kg pâte sèche}}{0,87} = 1149 \text{ kg bois sec}$$

$$mB \text{ mélèze exot.} = \frac{1000 \text{ kg pâte sèche}}{0,83} = 1205 \text{ kg bois sec}$$

Par contre au niveau de l'expérimentation, le ratio liqueur/bois adopté fut de 5 pour 1 (en poids). Il faudra en tenir compte dans le calcul de l'énergie requise.

$$q \text{ épinette} = [(5745 \times 1,0) + (1149 \times 0,55)] \text{ kg} \times \frac{\text{cal}}{\text{g } ^\circ\text{C}} \times \frac{1000 \text{ g}}{\text{kg}} \times 155 ^\circ\text{C}$$

$$= 924,7 \times 10^6 \text{ cal} \times 1,163 \times 10^{-6} \text{ kWh/cal} = 1140 \text{ kWh}$$

$$\text{Et puis; } q \text{ mélèze} = 1195 \text{ kWh}$$

Si nous fixons un coût d'électricité à \$0,024/kWh [53] et une efficacité de la bouilloire à 90% (équipement un peu désuet),

nous arrivons à un coût de ;

$$\text{Epinette; } 1140 \text{ kWh} \times \frac{\$0,024}{\text{kWh}} \times \frac{100}{90} = \frac{\$30.40}{\text{tonne pâte sèche}}$$

$$\text{Mélèze exot.; } \frac{\$31.87}{\text{tonne pâte sèche}}$$

La différence des coûts entre les essences ne dépend que de l'écart entre leur rendement respectif. Bien que les mélèzes exotiques causent une dépense supérieure en vapeur, la différence n'est que de 4,8%, ce qui ne peut affecter que très faiblement un budget pour une production industrielle.

Pour le raffinage, l'énergie électrique entraîne aussi des frais majeurs d'opération. La dépense énergétique ne provient que de l'entraînement du moteur. La variation de l'indice d'égouttage, rattachée à une variation de l'énergie spécifique, influence la consommation d'énergie électrique du moteur. Toutes les comparaisons graphiques des propriétés physiques ou optiques des pâtes ont été faites à des indices d'égouttage de 300 ml (CSF) ou des rendements moyens de 85%. Se référant à la figure 14, nous pouvons déterminer l'énergie spécifique requise pour chacune des essences;

Epinette noire (300 ml = CSF); 6,5 MJ/kg = 1807 kWh/tonne sèche

Mélèze exot. (300 ml = CSF); 7,3 MJ/kg = 2029 kWh/tonne sèche

Si le coût de l'électricité est de \$0,024/kWh [53], alors:

Epinette noire;  $1807 \text{ kWh/tonne} \times \$0,024/\text{kWh} = \$43.37/\text{tonne sèche}$

Mélèze exot.;  $2029 \text{ kWh/tonne} \times \$0,024/\text{kWh} = \$48.70/\text{tonne sèche}$

Réunissant tous les coûts énergétiques (cuisson et raffinage), nous pouvons remarquer que le bois de mélèze exotique demande beaucoup plus d'énergie dû à son fort taux de matières extractibles affectant le rendement en pâte, et sa densité élevée affectant l'énergie spécifique de raffinage.

Epinette noire;  $\$30.40 + \$43.37 = \$73.77$

Mélèze exotique;  $\$31.87 + \$48.70 = \$80.57$

Cette demande plus élevée d'énergie entraîne un coût supérieur de 9,2% par tonne de pâte sèche produite.

### 6.3 Coûts des agents chimiques

Lors de la cuisson des copeaux, nous avons utilisé une liqueur de réaction préparée avec un seul constituant chimique solide, le sulfite de sodium,  $\text{Na}_2\text{SO}_3$ . L'ajout d'hydroxyde de sodium pour l'augmentation du pH n'apparaît pas aux calculs des coûts.

Nous avons donc mélangé le sulfite de sodium à un certain volume d'eau, c'est-à-dire 50 g d'agent chimique pour 1000 ml d'eau afin d'obtenir une concentration de liqueur de 5% telle que

décrite dans l'élaboration de l'expérimentation. De plus, le ratio liqueur/bois de 5 à 1 et une pureté de 94,6% pour le sulfite sont venus influencer les coûts de la cuisson;

$$50 \text{ g Na}_2\text{SO}_3 \times 5 \text{ kg liq.} \times 1 \text{ L liq.} \times 1 \text{ kg} \times 100\% = \frac{25\% \text{ de Na}_2\text{SO}_3}{\text{sur bois sec}}$$

Si nous avons des rendements de 87% et de 83% en moyenne pour l'épinette noire et les mélèzes exotiques, nous pouvons calculer le poids de  $\text{Na}_2\text{SO}_3$  requis;

$$\text{Epinette; } \frac{25 \text{ kg Na}_2\text{SO}_3}{100 \text{ kg bois sec}} \times \frac{100 \text{ kg bois sec}}{87,0 \text{ kg pâte}} = \frac{0,287 \text{ kg Na}_2\text{SO}_3}{\text{kg pâte}}$$

$$\text{Mélèze; } \frac{25 \text{ kg Na}_2\text{SO}_3}{100 \text{ kg bois sec}} \times \frac{100 \text{ kg bois sec}}{83,0 \text{ kg pâte}} = \frac{0,301 \text{ kg Na}_2\text{SO}_3}{\text{kg pâte}}$$

En considérant un coût de \$257,00/tonne sèche [6,51] pour le sulfite de sodium avec une pureté de 94,6%, nous retrouvons;

$$\text{Epinette; } \frac{0,287 \text{ kg Na}_2\text{SO}_3}{\text{kg pâte}} \times \frac{\$257}{\text{tonne Na}_2\text{SO}_3} \times \frac{100}{94.6} = \frac{\$77,97}{\text{tonne de pâte}}$$

$$\text{Mélèze; } \frac{0,301 \text{ kg Na}_2\text{SO}_3}{\text{kg pâte}} \times \frac{\$257}{\text{tonne Na}_2\text{SO}_3} \times \frac{100}{94.6} = \frac{\$81,77}{\text{tonne de pâte}}$$

L'écart entre les deux coûts demeure assez faible par tonne

de pâte produite, 4,9%. Le rendement en pâte inférieur pour les mélèzes du Japon et d'Europe provoque cette hausse de coûts. Les matières extractibles en sont la principale cause, par contre si nous avions exercé une récupération chimique de la liqueur lors de la production de nos PCM, peut-être aurions nous eu un résultat plus favorable économiquement.

#### 6.4 Coûts totaux de production

D'autres coûts indirects peuvent venir s'ajouter à ceux que nous venons d'établir mais il en serait trop compliqué et inutile de tenter de les solutionner. Ainsi, en regroupant les quatre valeurs calculées, nous avons une bonne idée des frais globaux encourus pour la mise en pâte chimicomécanique de mélèze exotique ou d'épinette. Nous avons cru bon comparer les différents coûts à ceux d'une fabrication de pâte industrielle SCMP [54].

Le tableau 8 regroupe les coûts calculés aux paragraphes précédents. Les PCM de mélèze exotique obtiennent le coût total le plus faible, soit 14% de moins que la PCM d'épinette et 13% de moins que la SCMP industrielle, c'est-à-dire une économie de près de \$45 par tonne de pâte sèche produite. C'est au niveau des coûts d'approvisionnement en matière ligneuse que les pâtes des mélèzes japonais et européen font la différence, près de la moitié du prix comparativement aux deux autres types de pâte, soit un gain de \$58 par tonne de pâte. Pour la consommation d'énergie et de produits chimiques, les coûts sont relativement

les mêmes sauf pour la SCMP industrielle où ils sont coupés de moitié, \$16 contre \$31 environ, ce qui est dû à la différence des procédures expérimentales. La température et le taux de sulfonation inférieurs de la SCMP favorisent une utilisation moindre d'agents chimiques [54].

Enfin, mentionnons que ces coûts sont basés sur la production de pâtes écrues. Les coûts relativement élevés pour le blanchiment des PCM de mélèze exotique défavoriseraient grandement ce type de pâte si le produit fini exigé par le client doit posséder près de 70% de blancheur. Avec une économie de plus de \$40 par tonne de pâte, il devient plus raisonnable de conserver nos pâtes écrues pour en faire des cartons ou des sacs de papier foncé.

	PATES ECRUES (CSF : 300 ml)		
	PCM MELEZES EXOTIQUES	PCM EPINETTE NOIRE	SCMP (2)
	↓	↓	↓
—RENDEMENT MOYEN %	83.0	87.0	89.0
—BOIS	89.55	142.39	154.00
—ENERGIE :RAFFINAGE	48.70	43.37	38.00
CUISSON	31.87	30.40	16.00
—AGENT CHIMIQUE	81.77	77.97	81.00
COUTS VARIABLES(1)	251.89	294.13	289.00

(1) Tous les couts sont en \$ canadiens de 1988.(\$/TMSA)

(2) Annual Meeting, CPPA 1982.

TABLEAU 8 : BREVE ANALYSE ECONOMIQUE

## CHAPITRE 7

### CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

Etant donné que l'épuisement de la matière première s'accélère grandement, il convient d'élargir le choix des essences de bois à utiliser au niveau de la fabrication des pâtes et papiers. Pour combler ce besoin urgent, des essences à croissance rapide comme les mélèzes japonais et européen semblent représenter une option d'avenir, mais encore faut-il connaître la qualité des fibres de ces deux espèces résineuses pour en arriver à une substitution réaliste. Quoique plus rigides, les fibres de mélèze sont aussi longues que celles des essences commerciales comme l'épinette noire et le sapin baumier. La composition chimique de leur bois, qui donne un aspect plutôt foncé à la pâte, est la principale lacune à combattre lors de la mise en pâte.

Avec une telle composition chimique, où l'on y retrouve une quantité importante de matières extractibles, les mélèzes exotiques donnent significativement des rendements en pâte plus faibles que ceux obtenus avec l'épinette noire dans des conditions de cuisson au sulfite alcalin lors d'un procédé chimicomécanique.

Par contre l'éventuelle utilisation des mélèzes japonais et européen comme bois d'approvisionnement pourrait réduire les coûts de matière première car ces essences croissent presque trois fois plus rapidement que l'épinette noire et peuvent



fournir jusqu'à 1.25 fois plus de fibres. Ce qui rééquilibrerait avantageusement la différence au niveau du rendement en pâte obtenu.

Au niveau des propriétés physiques, les PCM de mélèze japonais et européen que nous avons réalisées possèdent une résistance à la rupture plus faible que les PCM d'épinette. Par contre elles démontrent une résistance à la déchirure beaucoup plus forte étant donné que la rigidité de leurs fibres rend la feuille beaucoup moins dense. Ce manque de souplesse chez les fibres de mélèze entraîne également une consommation accrue d'énergie spécifique pour atteindre un niveau d'indice d'égouttage donné comparativement aux fibres d'épinette dont la souplesse permet d'exercer une meilleure fibrillation.

Sans vouloir se répéter, il importe de souligner que la faible blancheur des pâtes de mélèze en fait une essence compromise pour la production de papier-impression. Etant donné qu'il est économiquement impensable de blanchir ces PCM de mélèze bien qu'elles possèdent relativement de bonnes propriétés physiques, la production d'un tel type de pâte à haut rendement pourrait servir à la fabrication de certains cartons ou papiers bruns coûteux à produire par d'autres procédés chimiques à faible rendement.

Enfin si certains projets de recherche ultérieurs sont axés sur la mise en pâte chimicomécanique de mélèze japonais ou

européen, nous recommandons certaines directives qui pourraient probablement améliorer la qualité des pâtes à fabriquer, ou donner une bonne ligne de direction aux projets à entreprendre;

- Produire des pâtes au sulfite alcalin avec utilisation d'anthraquinone afin d'augmenter à la fois le rendement, la force et la blancheur de ces pâtes.

- Utilisation de copeaux de mélèze déstructurés pour favoriser une meilleure pénétration de la liqueur. Une meilleure sulfonation en résulterait et les propriétés mécaniques en seraient également augmentées.

- Employer un mélange de bois d'essence feuillue et de mélèze exotique dans un procédé chimicomécanique alcalin car dans de telles conditions, les pâtes d'essence feuillue sont plus intéressantes optiquement et n'ont aucun effet néfaste sur les propriétés mécaniques des pâtes de résineux. Donc, avec un tel mélange, la blancheur ne peut être qu'améliorée.

- Produire des PCM avec une phase chimique interstage, c'est-à-dire entre deux stages de raffinage au lieu d'opérer le raffinage sur la pâte déjà traitée chimiquement.

## CHAPITRE 8

## BIBLIOGRAPHIE

- 1 - Balatinecz, J.J., Properties and utilization of larch grown in Canada-Larch symposium: potential for the future, Ontario ministry of natural resources, March 1983, pp. 65-80.
- 2 - Anonyme, Ministère des Terres et Forêts, Journée d'étude sur le peuplier hybride et le mélèze, Service de l'information, Gouvernement du Québec, décembre 1977, TFI 5390-7, pp. 3-42.
- 3 - Stipanivic, A., L'amélioration du genre mélèze (Larix sp.) au Service de la recherche des Terres et Forêts, Gouvernement du Québec, mémoire no.20, 1975, pp. 9-11,13-27.
- 4 - Anonyme, 1986 Larch Workshop, Service canadien des forêts, Gouvernement du Canada, octobre 1986, pp. 17-49,127-137.
- 5 - Leboeuf, S., Mise en pâte à très haut rendement de jeunes mélèzes de plantation, Mémoire de maîtrise, CRPP, UQTR, août 1987.
- 6 - Anonyme, Revue statistique du Canada, Statistiques Canada, Indice des prix des produits industriels par produits et aggrégation de produits, 1987.

- 7 - Hosie, R.C., Arbres indigènes du Canada, Fides, Montréal, 1980, p. 58.
- 8 - Beaulieu, G., Le mélèze, Forêt Conservation, juin 1982, pp. 14-19.
- 9 - Einsparh, D.W., Pulping of larch, The Institute of Paper Chemistry, Project 3409, septembre 1979, pp. 1-10.
- 10 - Kubes, G., Swan, H.S.D., The availability and suitability of larch as pulpwood, its extractives and their uses, Pulp & Paper Institute of Canada, Report no. 287, June 1974, 24 pages.
- 11 - Bousquet, J.P., Production de pâte mécanique et chimicomécanique à partir de mélèze laricin, Mémoire de maîtrise, CRPP, UQTR, janvier 1986.
- 12 - Lauzon, F., Production de pâtes thermomécaniques et chimico-thermomécaniques de mélèze laricin, Mémoire de maîtrise, CRPP, UQTR, janvier 1986.
- 13 - Koran, Z., Les caractéristiques papetières des bois feuillus, Forêt et Papier, Mars/Avril 1981, p. 10.

- 14 - Valade, J.L., Lapointe, M., Daneault, C., Law, K.N., Lo, S.N., Etude sur la valorisation du mélèze, Rapport technique présenté par le Centre de recherches en Pâtes & Papiers de l'Université du Québec à Trois-Rivières au M.E.R du Québec, avril 1986, pp. I4-I10, II4-II8, III1-III18, IV1-IV11, V1-V4.
- 15 - Dubois, A., Remise en valeur de boisés dégradés et de friches à l'aide de Larix laricina, Mémoire de baccalauréat, Faculté de foresterie et de géodésie, Université Laval, avril 1987.
- 16 - Paillé, G., Bitto, H., Les mélèzes japonais de Harrington; un exemple de haute productivité en foresterie, Forêt Conservation, volume 45, no.4: 26-29, 1979.
- 17 - Hakkila, P., Nikki, M., Palenius, I., Suitability of larch as pulpwood for Finland, Paperi Puu 54, no.2: 41-58, 1972.
- 18 - Isebrands, J.G., Hunt, C.M., Growth and wood properties of rapid-grown japanese larch, Biology Technical Session, Chicago, 1974, pp. 119-128.
- 19 - Sasaya, T., Demachi, S., Terazawa, M., Studies on the extractives of larch, Research Bulletins of the College Experiment Forests, vol. XXVII, no.2, pp. 429-443, 1970.

- 20 - Hakkila, P., Winter, A., On the properties of larch wood in Finland, Communications Institute Forestalis Fenniae, rapport no.79, Helsinki 1973, 43 pages.
- 21 - Hunt, K., Transformation des mélèzes en pâte kraft, Revue bimestrielle de recherches, vol. 35, no.6, novembre-décembre 1979, pp. 34-35.
- 22 - Law, K.N., Valade, J.L., Lapointe, M., Mechanical pulping (RMP and TMP) of young larches - wood and pulp characteristics, Proceedings of 1986 Tappi Pulping conference, pp. 243-249.
- 23 - Einspahr, D.W., Wyckoff, G.W., Fiscus, M., Larch, a fast growing fiber source for the Lake States and Northeast, Journal of forestry, February 1984, pp.104-106.
- 24 - Law, K.N., Valade, J.L., Daneault, C., Pâtes mécaniques de mélèze, RMP-CRMP-TMP-CTMP-Propriétés, Revue A.T.I.P., vol. 41, no.4, avril 1987, pp.187-192.
- 25 - Hale, J.D., Clef pour l'identification macroscopique des bois usuels au Canada, Traduction no. 5, Département d'exploitation et d'utilisation des bois, Université Laval, novembre 1968, pp. 1-3.

- 26 - Lemieux, G., Essais d'induction de la végétation vasculaire par le bois raméal fragmenté de certaines essences, Département des Sciences forestières, Université Laval, rapport photocopié, septembre 1985,
- 27 - Valade, J.L., Law, K.N., Les pâtes à haut rendement à base de mélèze, Prétirés des deuxièmes Entretiens du Centre Jacques-Cartier, Montréal, octobre 1988, pp. 34-40.
- 28 - Atack, D., Heitner, C., The current status of CMP as it relates to the production of pulping papers, Miscellaneous Report of Paprican, MR20, June 1982, 38 pages.
- 29 - Lemay, Y., Pâte à très haut rendement avec traitement chimique, Forêt et Papier, janvier-février 1985, pp. 4-7 et 16-23.
- 30 - Willis, J.M., Delafield, C., Goring, D.A.I., The effect of process variables on the leaching of lignin and carbohydrates from high yield chemimechanical sulphite pulps, Journal of Pulp & Paper Science, vol. 12, no.1, January 1986, pp. J10-J15.
- 31 - Côté, W.A., Timell, T.E., Studies on larch arabinogalactan in Tamarack, Tappi Journal, vol. 50, no.6, pp. 285-289, June 1967.

- 32 - Deshayé, R., Mihelich, W.G., Cuissons de différentes espèces pour une pâte de sulfite à très haut rendement - propriétés et pollution, Prétirés de la Conférence technologique estivale 1981, Section technique ACPPP, Montebello, Québec, pp. 35-42.
- 33 - Deilgat, J.D., Pâte chimicomécanique de tremble, Pulp & Paper Canada, vol. 85, no.6, June 1984, pp. T148-T151.
- 34 - Imada, S.E., Fairchild, R.S., Tay, C.H., Effects of liquor pH on sulphite/quinone cooking of black spruce for chemimechanical pulp, Journal of Pulp and Paper Science, vol. 13, no.2, March 1987, pp. J39-J43.
- 35 - Franzen, R., Li, K., Aspen CMP, a supplementary mechanical pulp, Journal of Pulp and Paper Science, vol. 10, no.2, March 1984, pp. J40-J49.
- 36 - Koran, Z., Lo, S.N., Valade, J.L., Strength properties of birch and aspen sulphite pulps in the yield of 77-94%, Tappi Proceedings, 1982 International Sulphite Pulping Conference, pp. 99-102.
- 37 - Giertz, H.W., CMP of hardwoods, Preprints of International Symposium on New Forestry Resources for the Pulp and Paper Industry, Madrid, May 1974, pp. 244-276.



- 38 - Beatson, R., Heitner, C., Atack, D., Factors affecting the sulphonation of spruce, Preprints of 1983 CPPA Annual Meeting, pp. A57-A61.
- 39 - Lemay, Y., Goel, K., Ayroud, A.M., Beaupré, B., Pâte chimicomécanique: rendement, raffinage et qualité, Prétirés de la Conférence technologique estivale 1979, Ste-Adèle, Québec, pp. K1-K11.
- 40 - Law, K.N., Lapointe, M., Valade, J.L., Chemimechanical pulping of tamarack-Part 1. Chip compression and water extraction, Preprints of 73rd Annual Meeting of CPPA, 1987, pp. 105-112.
- 41 - Law, K.N., Valade, J.L., Daneault, C., Chemimechanical pulping of tamarack-Part 2. Effects of pH, sodium sulphite and AQ, Preprints of 73rd Annual Meeting of CPPA, 1987, pp. B159-B167.
- 42 - Einspahr, D.W., McDonough, T.J., Joachimides, T., Kraft pulping characteristics of European, Japanese, and European and Japanese larch hybrids, Tappi Journal, vol. 66, no.8, August 1983, pp. 72-76.
- 43 - Atack, D., Heitner, C., Karnis, A., Ultra-high yield pulping of Eastern black spruce-Part 2, Pulp and Paper Can., vol. 82, no.C, 1981, pp. 44-51.

- 44 - Lo, S.N., Valade, J.L., Sulphite chemimechanical pulp from larch (tamarack), Tappi Proceedings, 1986 Pulping Conference, pp. 307-310.
- 45 - Janson, J.J., Marmstrom, B., Principles of chemical pretreatment in the manufacture of CMP and CTMP from hardwoods, Pulp and Paper Can., vol. 82, no.4, April 1981, pp. T111-T116.
- 46 - Daneault, C., Law, K.N., Valade, J.L., Brightening of ultra-high yield larch pulps, Fourth International Symposium on Wood and Pulping Chemistry, Paris, 1987, vol. 2, pp. 229-232.
- 47 - Law, K.N., Lo, S.N., Valade, J.L., Beating behavior of sulphite-mechanical hardwood pulps, Pulp and Paper Can., vol. 86, no.1, January 1985, pp. T27-T31.
- 48 - Heitner, C., Hattula, T., Ultra-high yield pulping. Part 6 : The effect of sulphonation on the development of fibre properties, Journal of Pulp and Paper Science, vol. 14, no.1, January 1988, pp. J6-J11.
- 49 - Corson, S.R., Allison, R.W., Richardson, J.D., Chemimechanical pulp of mature radiata pine, Tappi Proceedings, 1982 International Sulphite Pulping Conference, pp. 211-217.

- 50 - Seth, R.S., Page, D.H., Fiber properties and tearing resistance, Proceedings of International Paper Physics Conference, 1987, p. 9-13.
- 51 - Anonyme, Industrie des pâtes et papiers, Statistiques du Canada, Indices des produits industriels, substances chimiques et autres fournitures consommées, Tableau 6, 1987.
- 52 - Anonyme, The industrial wood energy handbook, Georgia Institute of Technology - Technology Applications Laboratory, Van Nostrand Reinhold, New York, U.S.A., 1987, p. 163.
- 53 - Anonyme, L'énergie au Québec, Prix de vente moyens de l'électricité, secteur industriel, Editeur officiel du Québec, Québec, 1987, p. 38.
- 54 - Anonyme, Sulphonated chemimechanical pulp (CIP), Valeurs tirées de Preprint of CPPA 1982 Annual Meeting, 1982.

# ALKALINE SULFITE HIGH YIELD PULPING OF EUROPEAN AND JAPANESE LARCHES: COMPARISON WITH BLACK SPRUCE

J. L. Valade  
Professor

K. N. Law  
Research Associate

A. Dubois  
Graduate student

Centre de recherche en pâtes et papiers  
Université du Québec à Trois-Rivières  
C.P. 500, Trois-Rivières, Québec,  
Canada G9A 5H7

## ABSTRACT

The objective of this study has been to evaluate the behavior of European and Japanese larches in alkaline sulfite (pH = 12) chemimechanical pulping in relation to black spruce. The pulp yield ranged from 78 to 90% depending on the cooking time which varied from 20 to 80 minutes, at 170° C. Atmospheric refining was performed with a Sunda Defibrator 300CD refiner. The results obtained show that, at a given cooking time, black spruce gave the highest yield, Japanese larch the lowest and European larch was intermediate. Concerning the specific energy consumption, both larches required much more energy than black spruce, for a given level of freeness. Besides, both larches were relatively low in breaking length (4.5-6.5 km) in comparison with black spruce (6.5-9.0 km). On the other hand, they produced pulps with excellent tear index (8-9 vs. 6.5-7.5 mN.m<sup>2</sup>/g). As far as the pulp brightness is concerned the larches were about 15 points lower (25-35%) than black spruce (40-45%) when cooked under similar conditions. Since the pulps made from the larches are low in brightness and not economical to bleach, but are relatively good in mechanical properties, they should, however, find uses in packaging grades, particularly when they are employed in mixtures with black spruce or other traditional species.

## KEYWORDS

Alkaline sulfite, High yield pulping, Chemimechanical pulping, Atmospheric refining, Picea, Larix, Yield, Total carbon, Energy consumption, Freeness, Density, Breaking length, Tear index, Brightness, Specific scattering.

## INTRODUCTION

Larix species are the most productive of the conifers in Quebec and probably in eastern Canada, for rotation of less than 30 years (1). Other studies also confirm

the rapid growth of Larix species (2-6). The fact that Larix species perform well on a wide range of sites is most attractive to forest managers and investors alike (7-8). Short rotation larch plantations thus have a great potential for application as a raw material supply for the pulp and paper industry.

In earlier studies (9-12) we have examined the mechanical pulping characteristics of mature tamarack and three 10-year old Larix species (Japanese larch, European larch and tamarack) which produced, in fact, mechanical pulps with relatively good properties except for the brightness. In this paper, we are dealing with older plantation grown trees which have reached their maturity, 35-40 years. The principal purpose of the work has been to evaluate the chemimechanical pulping behavior of European larch (Larix decidua) and Japanese larch (Larix leptolepis).

## RESULTS AND DISCUSSION

### Pulp Yield

It is well known that larch contains a particularly high proportion of water soluble extractives (11, 13-14) and hence gives lower pulp yield as compared with other conifers. Fig. 1 shows that the plantation grown European and Japanese larches are no exception in alkaline sulfite chemimechanical pulping. Japanese larch has particularly low yield, about 6-8 points lower than black spruce. The yield of European larch lies between that of Japanese larch and that of black spruce. This drawback in pulp yield should not, however, overshadow the potential utilization of larch since it can grow 3 or more times as fast as the Canadian black spruce, and larch is about 25% denser than most of the other softwoods.

Pulp yield is closely correlated with the total carbon content in the spent liquor as illustrated in Fig. 2. In fact, pulp yield can be quite precisely predicted by using the equation derived from the data on yield and total carbon,  $Y = 95.56 - 0.61X$  which expresses a linear correlation between pulp yield (Y) and the total carbon (X) with a coefficient of determination,  $r^2$ , of 0.87.

Pulp yield is one of the key pulping factors which determine the quality and end uses of the pulp produced. As seen in Fig. 3, sheet density increases as more and more wood constituents such as lignin and hemicellulose are dissolved during the cooking process. The increased sheet density is a result of improved fiber flexibility and collapsibility. The influence of pulp yield on paper density is affected by the biological characteristics of wood species, such as fiber morphology. It is known that larch

possesses stiffer fibers due to their thicker cell wall which contributes to the reduced sheet density of both larches as indicated in Fig. 3. In other words, for a given degree of pulp yield, the paper characteristics will depend greatly on the nature of the individual fibers which make up the sheet structure.

The influence of wood species, or fiber characteristics, on paper properties such as breaking length and tear index is demonstrated in Figs. 4 and 5, respectively. In comparison with black spruce, the European larch as well as Japanese larch produce bulky sheets (Fig. 3) and as a result of reduced relative interfiber bonding area, give low fiber bonding strength or breaking length (Fig. 4). On the other hand, the stiffer fibers of larch have, though, an advantage of making paper with excellent tear index (Fig. 5), which is attributed to the fact that tear index is a measure of energy required to pull out the fibers in the rupture zone (15), and that in bulky sheets, the individual fibers are more susceptible to be pulled out from the structure owing to lack of strong interfiber bonding. The excellent tear strength would make the larch pulps suitable for paper products that require good tearing resistance, such as grocery sacks, for example.

#### Energy Consumption

Papermaking is an energy intensive process at all levels. In recent years means have been developed attempting to reduce energy consumption in the refining stage, for example. This includes steam treatment, mechanical compression and chemical pretreatment, etc., (16). However, wood species could play a significant role in determining the degree of energy requirement in a refining process such as shown in Fig. 6 which indicates that both larches require considerably higher specific energy for a given degree of freeness, in spite of the fact that the yields are very similar in the three cases. This is particularly true for freeness levels below 400 mL. The influence of wood species on energy requirement should be taken into account when economic considerations are made.

The level of energy used in refining affects not only the freeness of the pulp produced but other properties as well, for example, breaking length (Fig. 7) and tear index (Fig. 8). As the specific energy increases, the fibers are increasingly more developed for better interfiber bonding, and thus tensile strength of the sheet enhances as a result. On the other hand, however, as more energy is applied to develop the fibers, fiber shortening also occurs reducing rapidly the tear index as shown in Fig. 8. The input of energy should, therefore, be optimized in order to

tailor the pulp characteristics required by the end products.

#### Sheet Density

Sheet density is a measure of fiber conformability in the structure or an indication of interfiber bonding capacity. Fig. 9 reveals a close relationship between breaking length and sheet density. Note that the larch pulps behave differently, to some extent, than the spruce pulp. The former exhibit a curvilinear breaking length-density relationship instead of a linear correlation such as in the case of spruce pulp. In fact, the breaking length of larch pulps tends to level off at higher degrees of density implying that further increases in density, say beyond 0.5 g/cm<sup>3</sup>, would not assure any improvement on bonding strength due to its particular fiber characteristics.

In contrast to the breaking length, tear index drops as the sheet density augments as presented in Fig. 10. This is attributed to the fact that as the density increases, so does the interfiber bonding, the number of fibers being pulled out during the tearing process falls gradually, thus reducing the tearing resistance (15). This phenomenon is observed in all pulps studied.

#### Optical Properties

As expected, both European and Japanese larches produce pulps with quite low brightness when compared with black spruce (Fig. 11). The poor brightness of larch pulps is believed to be associated with the flavanoid compounds in the wood (14).

Fig. 12 indicates that Japanese larch pulp has higher specific light scattering than the spruce pulp, which is not surprising since the former produces bulkier sheets than the latter. But what is rather unexpected is that European larch pulp has lower specific scattering in spite of its low density sheets, compared with black spruce. This characteristic has been observed at all levels of pulp yield within the limit of the investigation.

#### CONCLUSION

1. In alkaline sulfite cooking, European and Japanese larches give significantly lower yield compared to black spruce.
2. Both larches require substantially higher specific energy consumption than black spruce for a given degree of freeness.
3. When compared with black spruce pulp, the larch pulps make bulkier sheets with lower breaking length but considerably higher tear index. Their brightness is

particularly poor.

4. Since the pulp made from larch are low in brightness and not economical to bleach, but are in general quite good in mechanical properties, they should, however, find uses in packaging grades, particularly when they are blended with black spruce or other traditional species.

## EXPERIMENTAL

### Materials

40-year old European larch and Japanese larch were obtained from an experimental plantation whereas the 35-year old black spruce came from a natural stand. Logs were debarked and chipped at the Duchesnay Forestry Station in the vicinity of Quebec city. The chips were screened with a Rader chip classifier. The accepted chips had a thickness of 2-6 mm.

### Cooking

Prior to cooking, 4 kg (o.d.) of chips were soaked over night in a liquor containing 50 g/L Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> at ambient temperature. The liquor-to-wood ratio was 5. The pH was adjusted to 12 by using NaOH.

After soaking, the liquor and the chips were transferred into a 30-L digester equipped with a recirculation system and indirect steam heating. The cooking was carried out at 170° C. The time required to reach this temperature was 13 minutes. The time at maximum temperature was fixed at 20, 40, 60 and 80 minutes. Cooking was triplicated.

### Pulp Yield

After cooking, the chips were washed and drained in a centrifuge extractor. The chips were then weighed and about 300 g of them was defibrated in a 4-L Waring blender, washed and dried at 105° C. Pulp yield was calculated based on the original dry weight of chips used.

### Total Carbon

Total carbon content in the spent liquor was measured by means of a IONICS Total Organic Carbon Analyzer, model 445. At first, a reference curve was established using a standard solution (1000 ppm of total carbon) of potassium phthalate (KHC<sub>8</sub>H<sub>4</sub>O<sub>4</sub>). Peaks were then obtained with various dilutions of spent liquor. Concentration of total carbon content of the spent liquor was estimated from the reference curve. Tests were repeated 3-5 times.

### Refining

Atmospheric refining was performed with a

Sunds Defibrator 300CD refiner at 3-4 levels of energy. The discharged consistency was in the neighborhood of 16%. The pulps produced were thoroughly washed by means of a centrifuge extractor which interior has been lined with a cotton cloth to retain the fines.

### Pulp Evaluation

Prior to handsheet formation, latency was removed from all pulps with a Domtar disintegrator (50 g; 2 min; boiling water). Pulp and handsheet properties were determined following the standard methods of the Technical Section of CPPA. All measurements were made at 23° C and 50% relative humidity. The optical characteristics were made with a Zeiss Elrepho photometer.

### LITERATURE CITED

1. Vallée, G. and Stipanovic, A., Proceedings of Larch Symposium (Toronto, 1982), "Growth and Performance of Larch Plantation", p. 47.
2. Isebrands, J.G. and Hunt, C.M., Wood and Fiber, "Growth and Properties of Rapid-Grown Japanese Larch, 7(2): 119 (1975).
3. Beaulieu, G., Forêt-Conservation, "Le mélèze", 48(6): 14 (1982).
4. Paillé, G. and Bitto, H., Forêt-Conservation, "Les mélèzes japonais de Harrington: Un exemple de haute productivité et de coopération en foresterie", 45(4): 26 (1979).
5. Popovich, S. and Houle, H., "Etude préliminaire de trois plantations du Québec (croissance, rendement et productivité)", Centre de recherches forestières des Laurentides, Inf. Rep.Q-F-X-3, Can. For. Ser., Env. Can., 1970.
6. Puttock, G.D., proceedings of Larch Symposium (Toronto, 1982), "Economics of Larch Production", p. 153.
7. Castonguay, A., "Rentabilité des reboisements au Québec. IV. Plantations de mélèze laricin et de pin blanc", Service de la recherche forestière, Ministère de l'énergie et des ressources, Mémoire no 59 (1979).
8. Isebrands, J.G., Einspahr, D.W., Phelps, J.E. and Crist, J.B., Tappi, "Kraft Pulp and Paper Properties of juvenile Hybrid Larch Grown under Intensive Culture", 65(9):122 (1982).
9. Law, K.N., Valade, J.L. and Daneault, C., Revue ATIP, "Pâtes mécaniques de mélèze: RMP, CRMP, TMP, CTMP - Propriétés", 41(4):187 (1987).

10. Law, K.N., Valade, J.L. and Lapointe, M., Proceedings of Tappi Pulping Conference, "Mechanical Pulping (RMP and TMP) of Young Larches - Wood and Pulp Characteristics", Book 2, p. 243 (1986).

11. Law, K.N., Lapointe, M. and Valade, J.L., Pulp Paper Can., "Chemimechanical Pulping of Tamarack. Part I.", 88(8):T262 (1987).

12. Law, K.N., Valade, J.L. and Daneault, C., Proceedings of CPPA Annual Meeting, "Chemimechanical Pulping of Tamarack. Part II.", P. B159-(1987).

13. Balatinecz, J.J., Proceedings of Larch Symposium (Toronto, 1982), "Properties and Utilization of Larch - An Overview", p. 65.

14. Hansmann A. and Sugden, E.A.N., Proceedings of Larch Symposium (Toronto, 1982), "The Chemistry and Kraft Processing of Larch". p. 115.

15. Seth, R.S. and Page, D.H., Proceedings of International Paper Physics Conference, "Fiber Properties and Tearing Resistance", p. 9 (1987).

16. Mackie, D.M. and Taylor, J.S., Pulp Paper Can., "Review of the Production and Properties of Alphabet Pulps", 89(2):58 (1988).

#### ACKNOWLEDGEMENT

The authors wish to thank Mr. Robert Lanouette for his technical assistance. The financial support of FCAR and MÉR of Quebec government and that of the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada are also gratefully acknowledged.

#### ILLUSTRATIONS

##### Figures:

1. Pulp yield vs. cooking time.
2. Pulp yield vs. total Carbon content.
3. Sheet density at 300 mL CSF vs pulp yield.
4. Breaking length at 300 mL CSF vs. pulp yield.
5. Tear index at 300 mL CSF vs pulp yield.
6. Freeness (CSF) at 85% yield vs. specific energy.
7. Breaking length at 85% yield vs. specific energy.
8. Tear index at 85% yield vs. specific energy.

9. Breaking length at 300 mL CSF vs. sheet density.

10. Tear index at 300 mL CSF vs. sheet density.

11. Brightness at 85% yield vs. freeness (CSF).

12. Specific light scattering at 85% yield vs. freeness (CSF).

Fig. 1

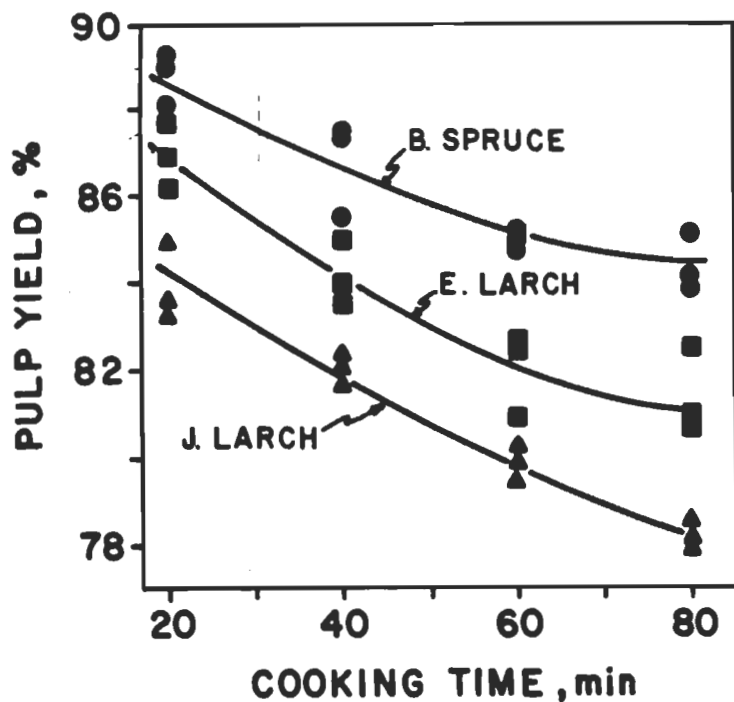


Fig. 2

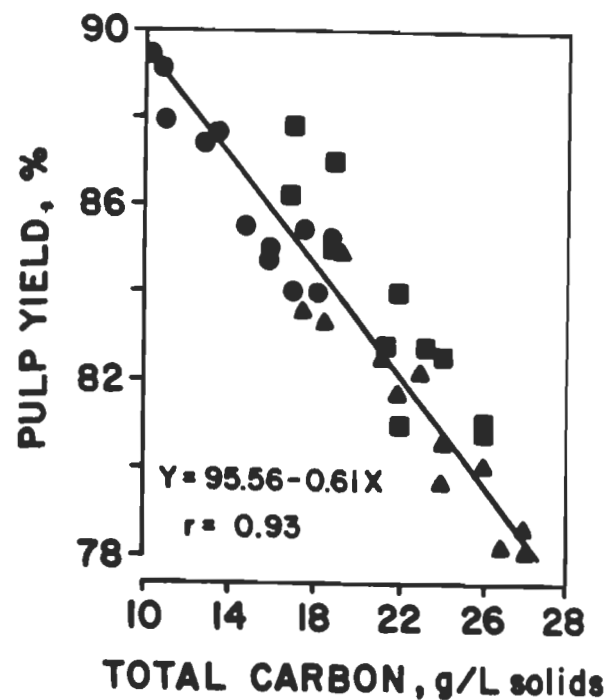


Fig. 3

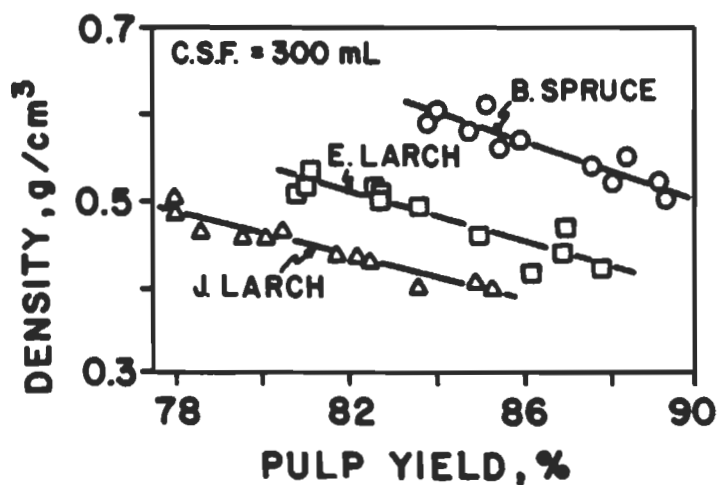


Fig. 4

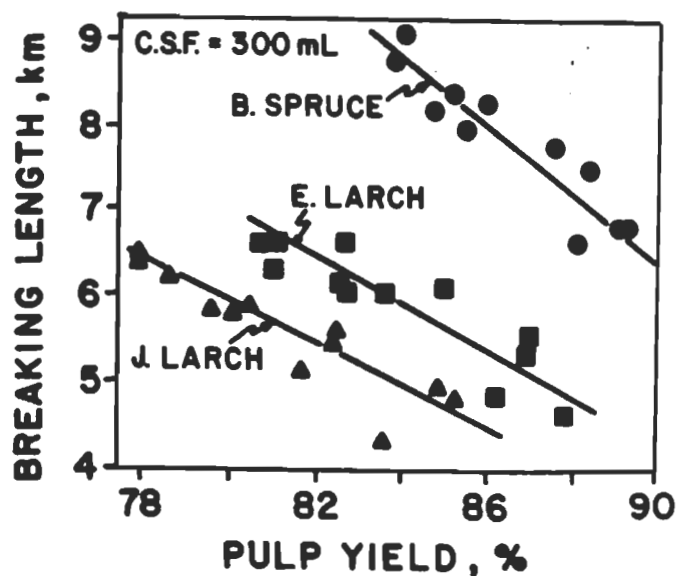




Fig. 5

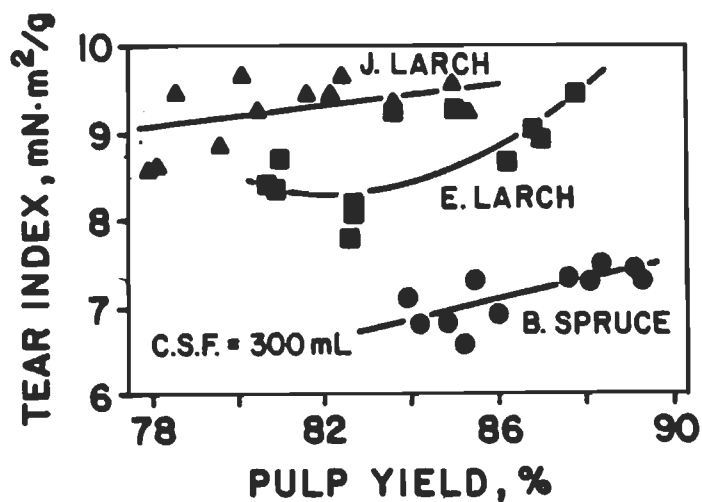


Fig. 6

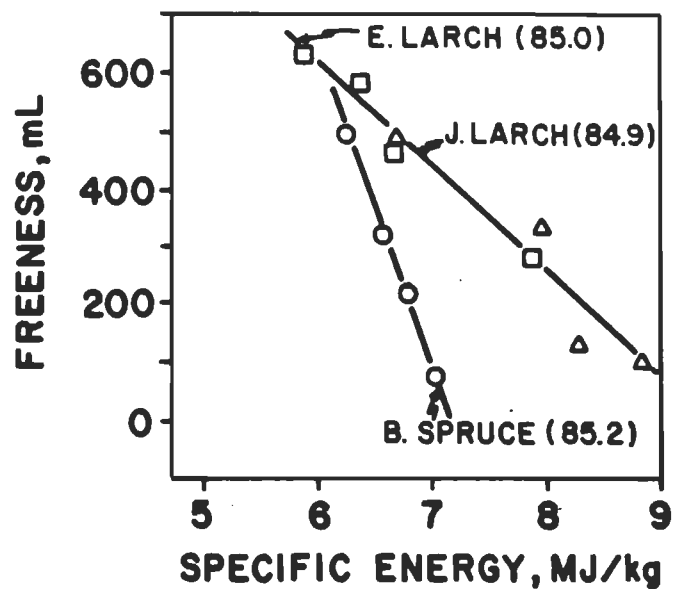


Fig. 8

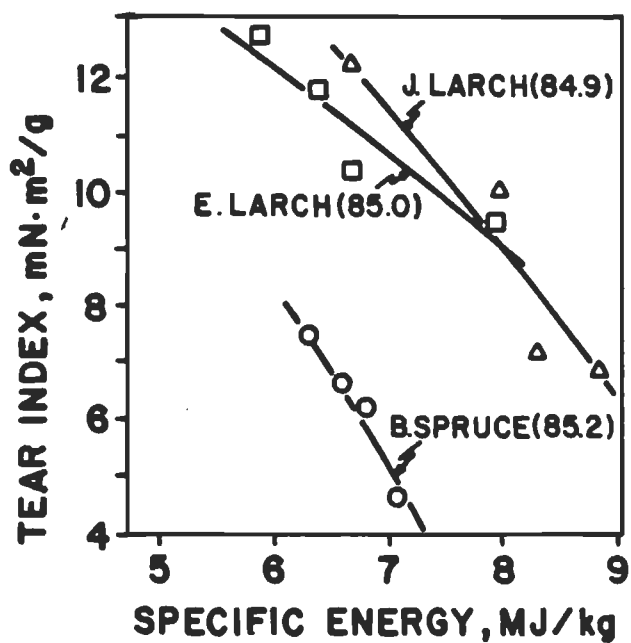
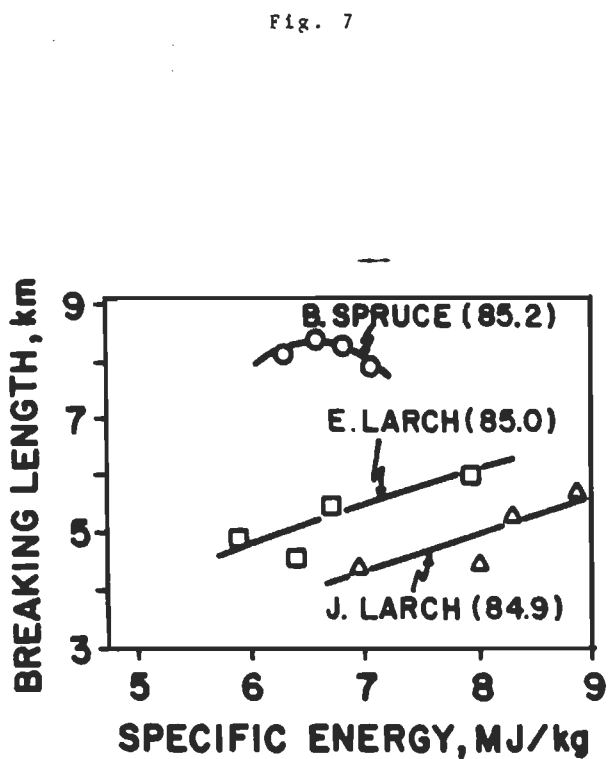


Fig. 9

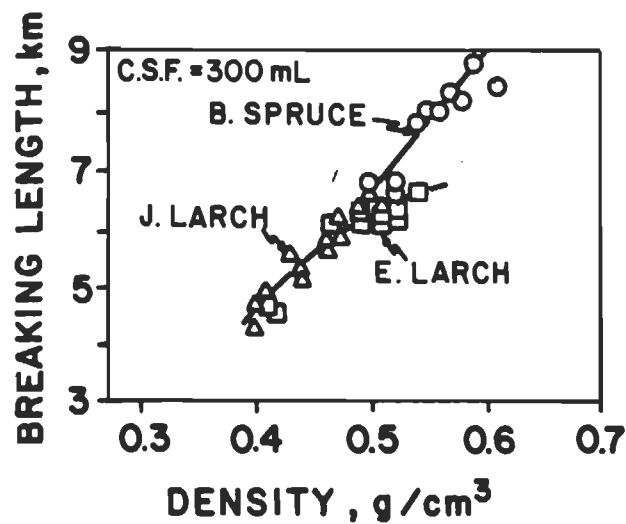


Fig. 10

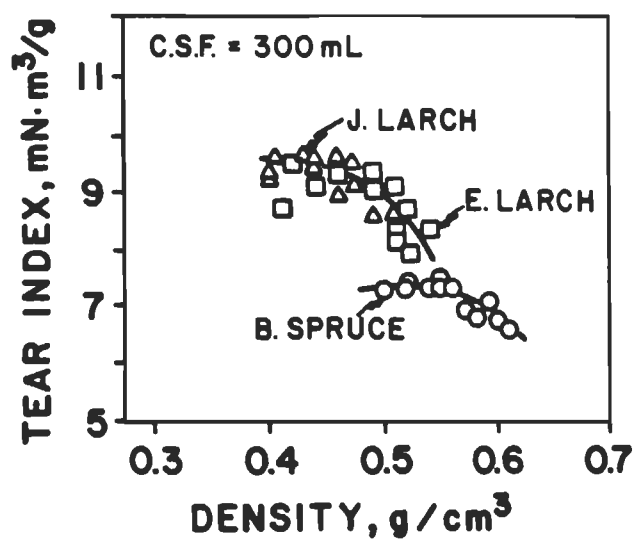


Fig. 12

Fig. 11

